



**Etude la multiplicité de l'émission électronique
secondaire de cibles minces de carbone sous l'impact
d'ions H^0 , H_2^+ , H_3^+ et d'ions moléculaires d'énergie de
l'ordre du MeV.**

Zvonimir Vidovic

► **To cite this version:**

Zvonimir Vidovic. Etude la multiplicité de l'émission électronique secondaire de cibles minces de carbone sous l'impact d'ions H^0 , H_2^+ , H_3^+ et d'ions moléculaires d'énergie de l'ordre du MeV.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Claude Bernard - Lyon I, 1997. Français. NNT : . tel-00108534

HAL Id: tel-00108534

<https://theses.hal.science/tel-00108534>

Submitted on 23 Oct 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

présentée

devant l'Université Claude Bernard Lyon-1

pour l'obtention du

DIPLOME de DOCTORAT
(arrêté du 30.3.1992)

par

VIDOVIC Zvonimir

Multiplicité des électrons secondaires émis
par des cibles minces de carbone
sous l'impact de projectiles H^0 , H_2^+ et H_3^+
d'énergie de l'ordre du MeV

Soutenue le 24 Juin 1997
devant la Commission d'Examen

Jury : M.	J.C. Poizat	Président
Mme	M. Fallavier	Directrice de Thèse
MM	S. Della Negra	Rapporteur
	J. Désesquelles	
	A. Dubus	Rapporteur
	H. Rothard	

THESE de L'UNIVERSITE DE LYON I (SCIENCES)

NOM : VIDOVIC (avec précision du nom de jeune fille, le cas échéant)		DATE de SOUTENANCE	
Prénoms : Zvonimir David Emmanuel		24 Juin 1997	
TITRE : <div style="text-align: center; margin-top: 10px;"> Multiplicité des électrons secondaires émis par des cibles minces de carbone sous l'impact de projectiles H^0, H_2^+ et H_3^+ de l'ordre du MeV </div>			
NATURE :		Numéro d'ordre : 144 - 97	
NOUVEAU <input checked="" type="checkbox"/> DOCT	LABEL EUROPEEN <input type="checkbox"/> OUI <input checked="" type="checkbox"/> NON	Spécialité : Physique	
Cote B.I.U. - Lyon : T 50/210/19 / et bis		CLASSE :	
RESUME : <p> Ce travail expérimental est consacré à l'étude de la multiplicité des électrons secondaires émis par des cibles minces de carbone bombardées par des protons, des atomes H^0 et des ions moléculaires H_2^+ H_3^+ d'énergie variant de 0.25 à 2.2 MeV. </p> <p> Le phénomène d'émission électronique secondaire par les surfaces des solides à l'impact de projectiles rapides résulte des interactions inélastiques des projectiles avec les électrons du solide. Une description phénoménologique et un rappel des différents modèles théoriques sont rassemblés dans un premier chapitre. </p> <p> Le second chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental utilisé pour la mesure événement par événement du nombre d'électrons émis par les deux faces d'une cible mince de carbone lors du passage des projectiles incidents. Le traitement informatique des données expérimentales, nécessaire à la détermination des distributions statistiques des électrons émis est également présenté. </p> <p> L'émission électronique induite par des atomes H^0 a été mesurée en corrélation avec l'état de charge des projectiles émergeant des cibles minces. Ces expériences, dont les résultats sont présentés dans le chapitre trois, nous ont permis de montrer le rôle particulier de l'électron d'un projectile selon qu'il reste ou non lié au projectile. </p> <p> Le chapitre quatre est consacré à l'émission électronique induite par des ions polyatomiques H_2^+ et H_3^+. Les résultats sont interprétés en terme d'effets collectifs dans les interactions de tels ions avec les solides. Le rôle de la proximité des protons, fragments des ions moléculaires, sur l'amplitude de ces effets collectifs est montré à partir de l'étude des distributions statistiques des électrons secondaires émis par la face d'émergence des cibles. </p> <p> Ces expériences ont permis de mettre en évidence des aspects particuliers des interactions d'atomes et d'ions polyatomiques avec les solides. </p>			
MOTS-CLES :			
électrons secondaires / interactions ions - matière / statistique d'émission ions polyatomiques / effets moléculaires / effets collectifs			
Laboratoire(s) de recherches : Institut de Physique Nucléaire de Lyon			
Directeur de recherches : M. FALLAVIER			
Président de jury : Pr J.-C. POIZAT			123 pages
Composition du jury : S. DELLA NEGRA / J. DESESQUELLES / A. DUBUS M. FALLAVIER / H. ROTHARD			

Remerciements

Ce travail a été réalisé dans le cadre de la collaboration des groupes *Bombardement Ionique et Analyse des Surfaces* et *Collisions Atomiques dans les Solides* de l'Institut de Physique nucléaire de Lyon.

Je voudrais remercier très chaleureusement Mireille FALLAVIER, Jean-Claude POIZAT, Joseph REMILLIEUX ainsi que Jean-Paul THOMAS de m'avoir accepté dans leur collaboration. En toutes circonstances, j'ai pu compter sur leurs très grandes compétences scientifiques ainsi que sur leur confiance et leur soutien. Ce travail doit beaucoup à Mireille FALLAVIER et Jean-Claude POIZAT, d'une complémentarité et d'une efficacité tout à fait remarquables.

Je remercie Serge DELLA-NEGRA et Alain DUBUS d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, ainsi que de m'avoir encouragé le moment venu, quand les lumières se sont éteintes.

J'ai une pensée amicale pour Jean-Claude POIZAT, qui accepta de présider le jury de cette thèse, ainsi que pour Jean DESESQUELLES et Hermann ROTHARD qui en firent partie.

Annick BILLEBAUD, précédente thésarde du groupe CAS, fut un compagnon de route idéal au début de ma thèse.

Les compétences et la disponibilité de Robert KIRSCH et d'Yves CHAMPELOVIER furent une aide précieuse pour résoudre les problèmes techniques que nous avons rencontrés au cours de nos manip.

Je n'en serais jamais arrivé là si je n'avais eu de talentueux professeurs, tels que James PAVAJOT, Michel LAMBERT ou encore Joseph REMILLIEUX tout au long de mon cursus universitaire.

François CHARBONNIER me permit durant deux années d'enseigner l'informatique en premier cycle, ce qui me permit de mesurer à quel point la recherche et l'enseignement sont complémentaires, d'autant que cela fut un jeu pour moi que de passer de l'autre côté de la barrière.

Didier PIAU, mathématicien au département de probabilités de l'Université Claude BERNARD – Lyon I, m'a beaucoup aidé dans certaines parties de ce travail, je lui suis infiniment reconnaissant de m'avoir toujours réservé un bon accueil, et d'avoir pris le temps de venir assister à la soutenance.

Les stagiaires de DEA Denis ROBICHON et Bertrand BENOÎT-JEANNIN qui m'ont rendu d'incalculables services se sont aussi avérés être des amis très précieux. Nous avons tous ensemble partagé les mêmes moments à différentes époques, nous soutenant mutuellement quand le besoin s'en faisait sentir.

Je voudrais aussi remercier ici dans le désordre moult camarades de route, étudiants et personnels de l'université, ou tout simplement amis rencontrés sur le bord d'une route tumultueuse : le barbu intégral Denis DAUVERGNE ; le *taquin* Michel CHEVALLIER ; le spiritueux Abdenacer BENYAGOUR ; ce cher charentais disparu Christophe BOBIN et ses potes, dont Youssef MESSOUS ; le "vieux" Henry JAFFREZIC ; le cycliste heureux Frédéric SANUY avec ses moustiques collés sur les dents ; l'américain Eric COLIN ; le fils de prolétaire dont le compte en Suisse ne désemplit plus Jean-François PERRIN ; l'allumé Laurent MICHAILLE ; Gauzelin BARBIER toujours de bonne humeur et disponible ; le tropézien Pascal DESCHAMPS, dit le rascal, jamais à court d'un bon mot ; l'électronicien-météorologiste-révolutionnaire toujours calme de génie Alain KNAPIK, aka "AK47", qui fait de l'électronique comme d'autres de la musique, et avec qui je suis parfois allé me faire

une petite gauloise ; les frères physiciens Marc et Denis BERTINI, toujours là (même le vikende) ; l'ardéchois Frédéric ROUVIER ; le crâne d'oeuf d'Olivier (Ol) DEBRÉ et ses zoziaux ; ma copine Juliette TUAILLON et toute sa bande (Françoise PAILLE entre autres) ; la troupe à Pierre-Olivier MORIN ; la voleuse de chocolat Holy RAZATRUC ; ma femme Sandrine, ainsi que notre amie commune, l'inestimable Sandra GAVARD, dite Sandra bavarde, et ses sœurs, sans qui nous ne serions pas rencontrés, ni n'aurais-je fait autant de fois le tour du monde en si peu de temps.

Et pour finir je voudrais avoir une pensée pour ma famille, frères, sœurs, parents, cousins, et pour ma fille, ma petite Ivana chérie.

Résumé

Ce travail expérimental est consacré à l'étude de la multiplicité des électrons secondaires émis par des cibles minces de carbone bombardées par des protons, des atomes H^0 et des ions moléculaires H_2^+ H_3^+ d'énergie variant de 0.25 à 2.2 MeV.

Le phénomène d'émission électronique secondaire par les surfaces des solides à l'impact de projectiles rapides résulte des interactions inélastiques des projectiles avec les électrons du solide. Une description phénoménologique et un rappel des différents modèles théoriques sont rassemblés dans un premier chapitre.

Le second chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental utilisé pour la mesure événement par événement du nombre d'électrons émis par les deux faces d'une cible mince de carbone lors du passage des projectiles incidents. Le traitement informatique des données expérimentales, nécessaire à la détermination des distributions statistiques des électrons émis est également présenté.

L'émission électronique induite par des atomes H^0 a été mesurée en corrélation avec l'état de charge des projectiles émergeant des cibles minces. Ces expériences, dont les résultats sont présentés dans le chapitre trois, nous ont permis de montrer le rôle particulier de l'électron d'un projectile selon qu'il reste ou non lié au projectile.

Le chapitre quatre est consacré à l'émission électronique induite par des ions polyatomiques H_2^+ et H_3^+ . Les résultats sont interprétés en terme d'effets collectifs dans les interactions de tels ions avec les solides. Le rôle de la proximité des protons, fragments des ions moléculaires, sur l'amplitude de ces effets collectifs est montré à partir de l'étude des distributions statistiques des électrons secondaires émis par la face d'émergence des cibles.

Ces expériences ont permis de mettre en évidence des aspects particuliers des interactions d'atomes et d'ions polyatomiques avec les solides.

Abstract

This work focuses on the study of the emission statistics of secondary electrons from thin carbon foils bombarded with H^0 , H_2^+ and H_3^+ projectiles in the 0.25–2.2 MeV energy range.

The phenomenon of secondary electron emission from solids under the impact of swift ions is mainly due to inelastic interactions with target electrons. The phenomenological and theoretical descriptions, as well as a summary of the main theoretical models are the subject of the first chapter.

The experimental set-up used to measure event by event the electron emission of the two faces of a thin carbon foil traversed by an energetic projectile is described in the chapter two. In this chapter are also presented the method and algorithms used to process experimental spectras in order to obtain the statistical distribution of the emitted electrons.

Chapter three presents the measurements of secondary electron emission induced by H^0 atoms passing through thin carbon foils. The secondary electron yields are studied in correlation with the emergent projectile charge state. We show the peculiar role of the projectile electron, whether it remains or not bound to the incident proton.

The fourth chapter is dedicated to the secondary electron emission induced by H_2^+ and H_3^+ polyatomic ions. The results are interpreted in terms of collective effects in the interactions of these ions with solids. The role of the proximity of the protons, molecular ion fragments, upon the amplitude of these collective effects is evidenced from the study of the statistics of forward emission.


These experiences allowed us to shed light on various aspects of atom and polyatomic ion interactions with solid surfaces.

Table des matières

Introduction	1
1 L'émission électronique secondaire	5
1.1 Ralentissement des projectiles rapides dans les solides	5
1.1.1 Cas des ions	5
1.1.2 Cas des électrons	8
1.1.3 Cas des atomes d'hydrogène	9
1.1.4 Cas des ions moléculaires et des agrégats	10
1.2 Description de l'émission électronique secondaire	14
1.2.1 Emission électronique secondaire potentielle	14
1.2.2 Emission électronique secondaire cinétique	15
1.3 Le modèle de Sternglass	23
1.4 Le modèle de Schou	25
1.5 Les simulations Monte Carlo	28
1.6 Aspect statistique de l'émission électronique secondaire	29
1.6.1 Distributions statistiques expérimentales	30
1.6.2 Modèle semi-empirique de Benka	32
Bibliographie du chapitre 1	35
2 Dispositif expérimental et analyse des données	41
2.1 Introduction	41
2.2 Le dispositif expérimental	42
2.2.1 Contraintes liées à la mesure	42
2.2.2 Description du dispositif expérimental	42
2.2.3 L'électronique associée	46
2.3 Analyse des spectres d'électrons	48
2.3.1 Décomposition des spectres en énergie	49
2.3.2 Principe de l'ajustement	55
2.3.3 Détermination du rendement électronique par la méthode du barycentre	57
2.3.4 Dépouillement d'un spectre	60

2.4	Analyse des spectres biparamétriques	62
2.4.1	Décomposition des spectres et ajustement	62
2.4.2	Analyse des distributions $\{W_n\}_{av}$ $\{W_n\}_{ar}$	64
	Bibliographie du chapitre 2	67
3	Emission électronique induite par des atomes H^0	69
3.1	Fraction de H^0 à l'émergence d'une cible mince	70
3.2	Emission électronique associée aux protons émergents	74
3.2.1	Emission électronique arrière	74
3.2.2	Emission électronique avant	84
3.3	Emission électronique associée aux neutres émergents	87
3.3.1	Emission électronique arrière	87
3.3.2	Emission électronique avant	90
3.4	Récapitulatif des aspects particuliers de l'EES induite par des atomes H^0	92
	Bibliographie du chapitre 3	95
4	Emission électronique secondaire induite par des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+	97
4.1	Emission électronique secondaire arrière	98
4.1.1	Libre parcours moyen des ions H_2^+ et H_3^+	98
4.1.2	Résultats de l'émission électronique arrière	100
4.1.3	Discussion des rendements électroniques arrière	102
4.2	Emission électronique secondaire avant	105
4.2.1	Explosion coulombienne et diffusion multiple	106
4.2.2	Résultats et discussion des rendements électroniques d'émission avant	107
4.2.3	Distributions statistiques des électrons émis à l'avant des cibles	109
4.3	Conclusion	112
	Bibliographie du chapitre 4	113
5	Conclusion	115
A	Etude de la loi de Pólya	119
A.1	Introduction	119
A.2	Obtention de la loi de Pólya	119
A.3	Convolution de deux lois de Pólya	120
	Bibliographie de l'annexe A	123

Introduction

 L'ÉMISSION D'ÉLECTRONS par la matière peut résulter de plusieurs causes, que ce soit l'augmentation de la température, l'application d'un champ électrique, ou encore le bombardement de celle-ci par des photons ou des particules chargées ou neutres. Le passage d'une particule dans un solide induit à la surface de celui-ci une émission d'électrons dits secondaires issus des interactions inélastiques du projectile avec les électrons du solide. On désigne ce phénomène par le terme d'Emission Electronique Secondaire (EES), *Ion Induced Electron Emission* (IIEE), ou encore *Particle Induced Electron Emission* (PIEE).

L'émission électronique secondaire fut observée pour la première fois par VILLARD en 1899 [3], qui expliqua l'émission cathodique d'un tube à décharge par le violent transfert de quantité de mouvement des ions positifs aux électrons. AUSTIN et STARKE en 1902 [1] mirent en évidence l'émission électronique induite dans les solides par des électrons. FÜCHTBAUER en 1906 [2] fut cependant le premier à faire des expériences dans des conditions raisonnablement définies, et établit ainsi les principales caractéristiques de l'émission électronique secondaire cinétique :

- le rendement électronique, c'est à dire le nombre d'électrons émis par ion incident qui augmente avec l'énergie incidente à basse énergie (en dessous de 100 keV/u) ;
- la distribution angulaire diffuse, dont l'intensité décroît avec l'angle d'émission par rapport à la normale à la surface ;
- la distribution énergétique des électrons émis, concentrée aux basses énergies, quasiment indépendante de l'énergie et de l'angle d'incidence du projectile. De plus, cette distribution est similaire à celle des électrons secondaires induits par des électrons incidents (si on néglige le pic d'électrons réfléchis) ;
- l'énergie des électrons secondaires est déterminée par la composition de la cible, indépendamment de l'énergie de l'ion incident.

Ce processus est donc depuis longtemps l'objet de nombreuses études, autant expérimentales que théoriques, et est utilisé dans de nombreux domaines, comme le développement de détecteurs (channeltrons, galettes de microcanaux, photomultiplicateurs, ...) ainsi que la caractérisation des surfaces (spectroscopie de photoélectrons, spectroscopie AUGER, microscopie électronique). Il peut

aussi être vu comme un phénomène perturbateur dans certaines expériences (effet de charge de certains matériaux).

L'émission électronique secondaire est donc un phénomène complexe se déroulant en trois étapes ; le premier aspect du processus est lié au transfert d'énergie aux électrons du solide dans les interactions du projectile incident avec le solide. Le deuxième aspect concerne le transport des électrons dans le solide, faisant intervenir la diffusion élastique et inélastique des électrons et créant une cascade d'électrons secondaires. Un troisième aspect traite du nombre d'électrons de cascade s'échappant de la surface ainsi que de leur distribution en énergie. En conséquence, un traitement détaillé de l'EES nécessite de bien connaître certains paramètres comme les probabilités de transition électroniques du solide étudié, les sections efficaces de diffusion élastiques et inélastiques d'électrons d'énergies comprises entre quelques électronvolts et quelques kilo-électronvolts, ainsi que des méthodes de traitement du transport et de la transmission des électrons à travers la surface du solide. La combinaison de tous ces effets et la complexité qui en résulte font que jusqu'à présent il n'y a pas eu de théorie générale concernant l'EES. Néanmoins, un certain nombre de ces problèmes a pu être traité séparément dans la littérature et on a au moins une compréhension qualitative, dans certains cas quantitative, d'un bon nombre d'aspects de l'émission électronique secondaire.

Plusieurs descriptions de ce phénomène existent, allant d'une approche semi-empirique jusqu'à des modèles faisant appel à la théorie du transport. Mais ces modélisations sont inadéquates dès que l'on aborde des cas plus complexes que le cas d'école représenté par le proton ou l'électron, comme par exemple celui d'un ion lourd d'état de charge élevé ou d'un projectile polyatomique (ion moléculaire ou agrégat). Dans le cas d'un ion polyatomique incident, il faut prendre en compte les effets d'écrantage de la charge de ses constituants (ions et électrons) ainsi que les phénomènes d'échanges de charge des ions. De plus, la dissociation de l'ion polyatomique en ses différents constituants, et la proximité spatiale des interactions simultanées de chacun d'eux modifie le processus de dépôt d'énergie à l'intérieur même de la profondeur moyenne d'échappement des électrons.

Actuellement tous ces processus d'interaction de projectiles polyatomiques avec les solides sont assez mal connus car la plupart d'entre eux sont inaccessibles à des mesures directes. L'émission électronique secondaire de la surface des solides peut donc apporter des informations essentielles sur les processus physiques qui interviennent à l'impact et au cours de la pénétration de tels projectiles dans les solides.

Au cours de ce travail nous nous sommes intéressés à l'émission électronique induite par des projectiles polyatomiques "*simples*" à petit nombre de constituants, des projectiles d'hydrogène, dans le domaine d'énergie du MeV où le ralentissement des projectiles est purement électronique. La technique de mesure de l'émission électronique repose sur la détection événement par événement des électrons émis par la surface d'un solide lors de l'impact du projectile incident. L'intérêt d'une telle détection réside dans le fait que la mesure ne se limite pas au seul rendement électronique mais qu'elle donne aussi accès à la statistique d'émission qui résulte de la variété, à l'échelle atomique, des séquences de collisions d'un projectile à un autre. Avec l'emploi de cibles minces, cette technique de détection des électrons peut être couplée à la détection en coïncidence des projectiles transmis à travers les cibles. On peut ainsi sélectionner un projectile en fonction de son état de charge à l'émergence des cibles. Cette configuration expérimentale nous a permis de mesurer simultanément l'émission électronique des deux faces d'une cible mince de carbone, associée à une séquence par-


ticulière d'interactions du projectile dans le solide. Nous nous sommes intéressés tout d'abord au cas des atomes d'hydrogène puis des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ . Avec des cibles de différentes épaisseurs nous avons étudié l'émission électronique particulière que ces projectiles induisent en comparaison à des protons de même vitesse, qui se reflète dans la multiplicité des électrons émis et en conséquence dans le rendement électronique. Les expériences ont été réalisées avec les faisceaux délivrés par l'accélérateur VAN DE GRAAFF 2.5 MV de l'IPN de Lyon. Ce travail s'est déroulé au sein d'une collaboration entre les groupes "Bombardement Ionique et Analyse de Surface" et "Collisions Atomiques dans les Solides" de l'IPNL.

Le phénomène d'émission électronique est présenté dans le premier chapitre. Après une présentation succincte des lois de ralentissement des projectiles rapides dans les solides, nous rappelons quelques modèles semi-empiriques et théoriques de l'émission électronique ainsi que les informations qu'on peut attendre de l'étude de la statistique d'émission. Le deuxième chapitre est consacré à une description du dispositif expérimental et de la méthode d'analyse des données expérimentales qui permet d'obtenir les distributions statistiques des électrons émis et le rendement électronique. Les résultats des expériences avec les atomes d'hydrogène et les ions moléculaires d'hydrogène sont présentés et discutés dans les chapitres trois et quatre, respectivement.

Bibliographie

- [1] L. AUSTIN, H. STARKE,
Ann. Physik, **9**(1902)271.
- [2] CH. FÜCHTBAUER,
Physikal. Zeitschr. 7Jg., Nov. 5(1906)153.
- [3] M.P. VILLARD,
Journal de Phys., **8**(1899)5.

1. L'émission électronique secondaire

ORSQU'UN PROJECTILE rapide pénètre dans un solide, ses interactions avec les électrons du solide conduisent à un transfert d'une partie de son énergie cinétique aux électrons du solide et donc à son ralentissement, dit ralentissement électronique. Grâce à l'énergie qui leur a été transférée, ces électrons (*“électrons de première génération”*) se déplacent dans le solide en communiquant une partie de leur énergie à d'autres électrons (*“électrons de cascade”*) dans des interactions inélastiques. Si au cours de leur déplacement dans le solide, ces électrons libérés approchent la surface dans certaines conditions requises d'angle et d'énergie, ils pourront être éjectés du solide. C'est le phénomène d'émission électronique secondaire cinétique. Après quelques rappels sur les processus de ralentissement électronique dans les solides de projectiles chargés ou neutres, y compris des électrons et des ions polyatomiques, nous allons décrire dans ce chapitre les différents éléments de la théorie de l'émission électronique secondaire, puis présenter différents modèles semi-empiriques et méthodes de simulations Monte-Carlo. Enfin nous nous intéresserons à l'aspect statistique de l'émission électronique.

1.1 Ralentissement des projectiles rapides dans les solides

1.1.1 Cas des ions

Le ralentissement d'un ion d'énergie E dans un solide est défini par le taux de perte d'énergie du projectile $dE/dx(E)$ dans le solide considéré, appelé également pouvoir d'arrêt du solide pour le projectile incident, noté $S(E)$. Ce ralentissement résulte des interactions de l'ion avec les différents constituants du solide. On distingue donc deux processus d'interaction :

- les collisions élastiques avec les noyaux cible qui provoquent un recul de ces noyaux et une déviation angulaire de la trajectoire de l'ion, et conduisent à une *“perte d'énergie nucléaire”* de l'ion ;
- les collisions inélastiques avec les électrons du solide qui provoquent des ionisations et excitations des atomes cible sans déviation notable de la trajectoire de l'ion et conduisent à une *“perte d'énergie électronique”* de l'ion.

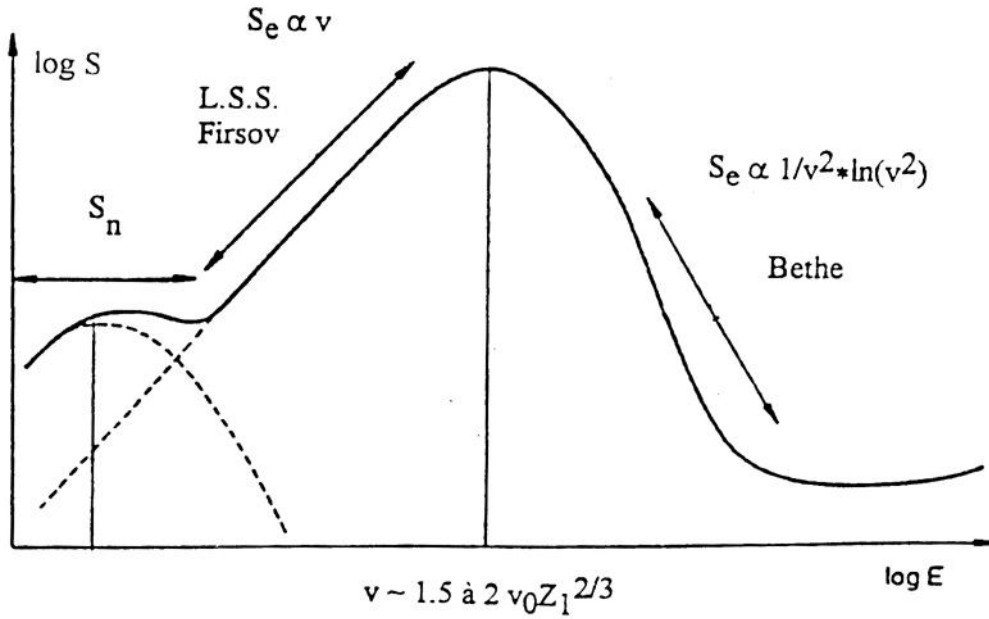


Figure 1.1 : Evolution de la perte d'énergie d'un ion en fonction de son énergie (S_n est la perte d'énergie nucléaire et S_e la perte d'énergie électronique). Les processus de ralentissement dominants sont indiqués dans chaque zone d'énergie. Le numéro atomique et la vitesse de l'ion incident sont donnés par Z_1 et v , v_0 est la vitesse de BOHR [18].

La **figure 1.1** représente schématiquement l'évolution du ralentissement d'un ion en fonction de son énergie incidente. A partir de cette figure, on constate que la perte d'énergie nucléaire n'intervient que pour des ions peu énergétiques, la perte d'énergie électronique étant très largement dominante quand l'énergie de l'ion augmente. En particulier pour des protons de 1 keV la perte d'énergie électronique dans du carbone est déjà dix fois plus grande que la perte d'énergie nucléaire. En fait avec des projectiles d'hydrogène, les interactions des projectiles incidents conduisant à l'émission électronique secondaire et au ralentissement des projectiles sont uniquement les interactions électroniques. On distingue deux domaines principaux de ralentissement électronique en fonction de la vitesse (ou de l'énergie) incidente. Les deux principaux domaines sont :

- à basse vitesse ($v \leq 2v_0 Z_1^{2/3}$) les ions ne sont pas complètement dépouillés de leurs électrons, et leur charge n'est pas $Z_1 e$ mais $Z_1^* e$. Cette charge effective $Z_1^* e$ correspond à une valeur moyenne de la charge de l'ion incident sur la zone d'interaction considérée et dépend donc de la nature et de la vitesse du projectile et aussi des caractéristiques de la cible.

Dans ce domaine où les échanges de charge entre le projectile et les atomes de la cible sont prédominants, LINDHARD et SCHARFF [43] ont calculé le pouvoir d'arrêt suivant, à partir d'une théorie qui décrit la diffusion élastique d'électrons libres de la cible dans le champ statique créé par le projectile écrané :

$$S_e = 8\pi N Z_1^{1/6} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} a_0 \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_0} \quad (1.1)$$

Dans cette expression, Z_1 et Z_2 représentent les numéros atomiques du projectile et de la cible respectivement, e la charge élémentaire, a_0 et v_0 le rayon atomique et la vitesse de BOHR, N le nombre d'atomes de la cible par unité de volume. L'application numérique donne :

$$S_e = 11.5 \frac{Z_2}{M_2} \frac{Z_1^{7/6}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_0} \quad (1.2)$$

où S_e est en $\text{keV}/(\mu\text{g}.\text{cm}^{-2})$, M_2 en uma, et $v/v_0 = \sqrt{\frac{E}{24.8 M_1}}$, avec E en keV et M_1 en uma. FIRSOV [29] a calculé une autre expression de ce pouvoir d'arrêt en considérant les transferts de quantité de mouvement entre les électrons du projectile et ceux de l'atome cible pendant l'interpénétration des nuages électroniques. L'utilisation d'un potentiel de THOMAS-FERMI conduit à une expression analogue à celle de la théorie de LINDHARD, SCHARFF et SCHIOTT (dite Théorie L.S.S.) [44]. Dans chacun des cas, S_e est proportionnel à v . Ce domaine de vitesse correspond pour des protons à des énergies inférieures à environ 100 keV ;

- à haute vitesse ($v \geq 2v_0 Z_1^{2/3}$) on admet généralement que le projectile est totalement ionisé. Si de plus la vitesse de l'ion est grande devant celle des électrons orbitaux de la cible ($v \geq v_0 Z_2^{2/3}$), l'interaction de cet ion avec les atomes de la cible peut alors être traitée comme une collision entre l'ion supposé ponctuel et les électrons de la cible assimilés à des électrons libres. Dans le cas d'une cible de carbone, ce domaine de vitesse correspond à des énergies incidentes supérieures à 270 keV/uma.

BETHE [9] a proposé une expression non-relativiste, donc applicable dans le cadre de notre travail, utilisant un potentiel purement coulombien :

$$S_e = 4\pi N Z_2 \frac{(Z_1 e)^2 e^2}{4\pi \epsilon_0 m v^2} \ln \left(\frac{2mv^2}{I} \right) \quad (1.3)$$

m est la masse de l'électron, I le potentiel d'ionisation moyen des atomes de la cible. L'application numérique donne :

$$S_e = 5.77 \frac{Z_2}{M_2} \frac{Z_1^2}{(v/v_0)^2} \ln \left(\frac{54.6}{I} \left(\frac{v}{v_0} \right)^2 \right) \quad (1.4)$$

où S_e est en $\text{keV}/(\mu\text{g}.\text{cm}^{-2})$, M_2 en uma, I en eV, et $v/v_0 = \sqrt{\frac{E}{24.8 M_1}}$, avec E en keV et M_1 en uma.

Quelques termes correctifs ont été proposés pour tenir compte de la non participation des électrons de cœur de l'atome cible au ralentissement (partie de plus basse vitesse du domaine de BETHE), des effets de polarisation d'atomes voisins de l'atome cible (partie de plus haute vitesse) qui réduisent le champ électrique dans les régions éloignées en diminuant la part des interactions à grands paramètres d'impact ou des effets relativistes. La **relation (1.3)** traduit cependant bien l'évolution du pouvoir d'arrêt à moyenne et haute énergie, qui suit une loi en $(1/v^2) \ln(v^2)$.

Dans le cas où les échanges de charge entre l'ion et les atomes cible ne sont pas totalement négligeables, il convient de remplacer le terme $Z_1 e$ de la **relation (1.3)** par la charge effective de l'ion $q^* = Z_1^* e$.

1.1.2 Cas des électrons

Comme les ions, les électrons interagissent avec les solides par collisions élastiques et inélastiques. Ils peuvent aussi être ralentis par des phénomènes radiatifs s'ils sont très énergétiques ($E \approx \text{MeV}$) donc en dehors du domaine d'étude de l'émission électronique. Dans nos conditions expérimentales ($E_{\text{max}} \approx 2.2 \text{ MeV/u}$) les électrons les plus énergétiques sont les électrons secondaires issus de collisions frontales proton-électron, dont l'énergie n'excède pas 5 keV.

Lors des collisions élastiques, l'électron est diffusé par un atome dont l'état quantique reste inchangé. Les transferts d'énergie aux modes de vibrations thermiques du réseau sont relativement faibles dans la mesure où la masse de l'électron est petite en regard de celle des centres diffuseurs. Les électrons sont peu ralentis, mais leurs trajectoires subissent des changements de directions d'autant plus importants que leur énergie est faible. Ainsi, à des énergies supérieures à une dizaine d'eV, les diffusions à petits angles sont plus probables, tandis qu'à des énergies inférieures, la diffusion tend à être isotrope. A basse énergie, la section efficace d'interaction élastique est plus importante que pour les interactions inélastiques.

Les diffusions inélastiques résultent de l'interaction entre les électrons incidents et ceux de la cible. Elles se traduisent par des excitations électroniques et des ionisations, donc une modification de l'énergie interne des atomes de la cible. On distingue les interactions individuelles (création de paires électron-trou dans la bande de valence, ionisation des niveaux de cœur des atomes du solide) des interactions collectives (excitations de plasmons). Jusqu'à une dizaine d'électronvolts, les interactions avec les électrons de valence sont les plus probables. Pour des énergies supérieures, tous les processus d'interactions peuvent entrer en jeu. Bien que l'ionisation des couches profondes des atomes cible demeure la moins probable, elle requiert néanmoins une certaine quantité d'énergie. Aussi ce mode de ralentissement joue-t-il un rôle important dans le pouvoir d'arrêt des électrons pour des énergies supérieures à quelques centaines d'eV. La **figure 1.2** montre l'évolution du libre parcours moyen inélastique d'un électron dans différents matériaux en fonction de son énergie incidente.

BETHE [10] a établi une expression du pouvoir d'arrêt pour un électron d'énergie E à l'aide de la formule relativiste de diffusion électron-électron de MØLLER :

$$S \equiv \left| \frac{dE}{dx} \right| = \frac{2\pi e^4 N_A Z_2}{(4\pi\epsilon_0)^2 M_2 m v^2} \left\{ \ln \frac{\epsilon^2(\epsilon + 2)}{2(I/E_0)^2} + \frac{1}{(\epsilon + 1)^2} \left[1 + \frac{\epsilon^2}{8} - (2\epsilon + 1) \ln 2 \right] \right\} \quad (1.5)$$

où m est la masse de l'électron, M_2 et Z_2 la masse et le numéro atomique de l'atome cible, I le potentiel moyen d'ionisation de l'atome cible, $N_A = 6.022 \cdot 10^{23} \text{ at/mol}$ est le nombre d'AVOGADRO, $\epsilon = E/E_0$, $E_0 = mc^2$. Ce qui donne dans le cas non relativiste :

$$S \equiv \left| \frac{dE}{dx} \right| = 7.8 \cdot 10^{10} \frac{Z_2}{M_2 E} \ln \left(1.166 \frac{E}{I} \right) \quad (1.6)$$

où I et E sont en eV, S en eV/(g.cm⁻²) et $v/v_0 = \sqrt{\frac{E}{1.351 \cdot 10^{-2}}}$, avec E en keV et M_2 en uma.

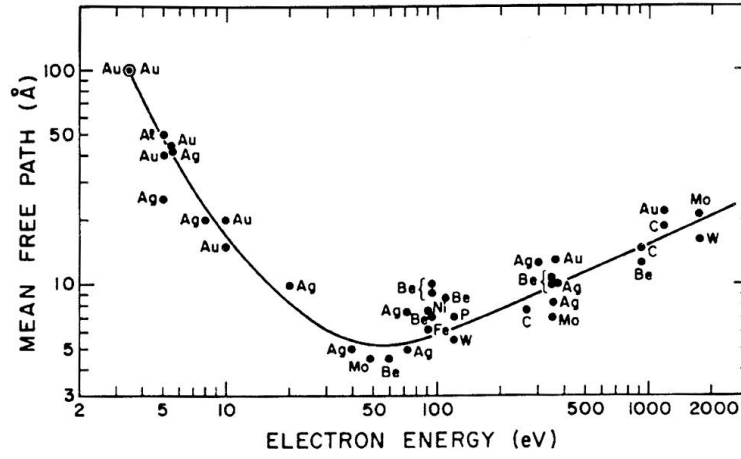


Figure 1.2 : Courbe universelle du libre parcours moyen inélastique d'un électron en fonction de son énergie cinétique [27, p. 129].

1.1.3 Cas des atomes d'hydrogène

Lorsque des atomes H^0 pénètrent dans une cible solide, on admet généralement qu'il perdent leur électron dès les premières couches atomiques, et que même si les protons ainsi créés gardent une quelconque corrélation avec leur électron, on ne peut véritablement parler de projectiles neutres dans le solide. Bien que ce processus d'ionisation soit dominant, en réalité sur une faible profondeur près de la surface une fraction non négligeable d'atomes neutres subsiste dans le faisceau incident. Le phénomène d'émission électronique secondaire qui concerne une région du solide proche de la surface ne sera pas insensible à la coexistence d'atomes neutres, de protons et d'électrons dans le faisceau incident.

KANEKO [38] a proposé récemment une expression analytique du pouvoir d'arrêt électronique pour des ions possédant un ou deux électrons liés et dont "l'état de charge est gelé" sur tout leur parcours. Son calcul, basé sur la théorie de BETHE est valable dans la même zone de vitesse et conduit, en négligeant les termes correctifs, à l'expression suivante, pour un ion avec un électron lié :

$$S_e = 4\pi \frac{e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2} N Z_2 \frac{1}{mv^2} \left[(Z_1 - 1)^2 \ln\left(\frac{2mv^2}{I}\right) + (2Z_1 - 1) \ln\left(\frac{v}{Z_2 v_0}\right) + Z_1 - \frac{11}{12} \right] \quad (1.7)$$

Dans le cas de l'atome H^0 , la **relation (1.7)** se réduit à :

$$S_e = 4\pi \frac{e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2} N Z_2 \frac{1}{mv^2} \left[\ln\left(\frac{v}{Z_2 v_0}\right) + \frac{1}{12} \right] \quad (1.8)$$

qui donne numériquement :

$$S_e = 5.77 \frac{Z_2}{M_2} \frac{1}{(v/v_0)^2} \left[\ln\left(\frac{v}{Z_2 v_0}\right) + \frac{1}{12} \right] \quad (1.9)$$

avec S_e en $\text{keV}/(\mu\text{g}.\text{cm}^{-2})$, et $v/v_0 = \sqrt{\frac{E}{24.8 M_1}}$, avec E en keV et M_1 et M_2 en uma.

On peut constater que cette expression du pouvoir d'arrêt du solide pour H^0 ne fait pas intervenir le potentiel moyen d'ionisation contrairement à l'expression du pouvoir d'arrêt du proton donnée par la formule de BETHE (**relation (1.3)**). Le milieu ralentisseur n'intervient que par l'intermédiaire de la densité atomique NZ_2 .

Des données expérimentales sur la perte d'énergie d'atomes H^0 dans les solides sont pratiquement inexistantes à cause de difficultés expérimentales liées aux échanges de charge des projectiles dans les solides. L'emploi de cibles très minces est nécessaire pour réaliser des mesures de coïncidence avec les neutres émergents de la cible, d'où un choix limité de matériau. De plus le faisceau doit être à l'état de prééquilibre de charge durant toute la traversée de la cible pour que la fraction d'atomes neutres résultant de la capture électronique soit négligeable dans le faisceau de neutres émergeant. Cette condition impose des énergies élevées (plusieurs MeV) d'où une difficulté supplémentaire car la perte d'énergie sera très faible en regard de l'énergie incidente. A notre connaissance les seules mesures publiées sont celles des expériences récentes de OGAWA *et al.* [48] avec des H^0 de 10 MeV, utilisant un spectromètre magnétique pour la mesure de l'énergie des neutres émergeant de cibles très minces de carbone amorphe. La valeur calculée à partir de la **relation (1.8)** proposée par KANEKO est en excellent accord avec cette valeur expérimentale. Nous verrons dans le chapitre suivant que le calcul du pouvoir d'arrêt du carbone pour des atomes H^0 d'énergie voisine de 2 MeV est également en accord avec nos mesures des rendements d'émission électronique secondaire.

1.1.4 Cas des ions moléculaires et des agrégats

Résumé de travaux sur la perte d'énergie d'ions moléculaires et d'agrégats d'hydrogène

Les premières expériences de perte d'énergie électronique d'ions moléculaires H_2^+ dans les solides ont révélé une perte d'énergie par proton différente de celle d'un proton isolé de même vitesse [15] [66] [26] [41]. Cette différence a été interprétée, notamment par BRANDT et RITCHIE [16] et ARISTA [3], en terme de phénomène d'interférences dans les interactions individuelles des ions constituant le projectile avec les électrons libres de la cible. Ce phénomène d'interférences appelé "*effet de proximité*", qui résulte de la proximité des ions en mouvement dans le solide, a été modélisé à partir d'une description diélectrique de la perte d'énergie dans les solides. La perte d'énergie d'un ion polyatomique est exprimée comme la somme de la perte d'énergie des constituants individuels et d'une fonction de corrélation ou "*fonction de proximité*" qui exprime l'effet d'interférences des interactions individuelles.

Les expériences plus récentes de perte d'énergie d'agrégats H_n^+ réalisées à Lyon dans le groupe "*Collisions Atomiques dans les Solides*" ont d'une part confirmé les données antérieures pour les ions H_2^+ et d'autre part montré que l'interprétation en terme d'effet de proximité est généralisable à de plus gros agrégats (jusqu'à $n \simeq 25$) [51]. Les principaux résultats peuvent être résumés ainsi :

1. à des énergies incidentes inférieures à 50 keV/p, l'effet de proximité est négatif et se traduit donc par une perte d'énergie totale de l'agrégat inférieure à la somme de la perte d'énergie de

n protons isolés. A des énergies supérieures à 50 keV/p, l'effet de proximité devient positif et la perte d'énergie de l'agrégat est plus grande que celle de n protons isolés. Cette dépendance en vitesse de l'effet de proximité est observée quelle que soit la taille de l'agrégat pour des valeurs de n entre 2 et 25 ;

2. l'écart entre la perte d'énergie relative par proton de l'agrégat et celle d'un proton isolé augmente avec n pour les petits agrégats ($n \simeq 5$) et se stabilise pour les plus grandes valeurs de n ;
3. l'amplitude de cet écart de perte d'énergie entre un proton dans un agrégat et un proton seul diminue avec l'épaisseur du solide traversé (entre 3 et 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$).

Après ce bref rappel de différents travaux sur la perte d'énergie d'ions moléculaires et d'agrégats d'hydrogène dans les solides, nous allons examiner plus précisément le phénomène de dissociation d'un projectile polyatomique dans un solide. C'est en fait un paramètre primordial de l'interaction de tels projectiles avec les solides, qui conditionne non seulement l'amplitude de l'effet agrégat mais aussi son évolution en fonction de la profondeur de pénétration dans le solide. Il est donc à la base des effets spécifiques observés sur la perte d'énergie comme en témoignent les expériences que nous venons de rappeler et sera évidemment un paramètre indispensable dans la discussion de nos résultats expérimentaux d'émission électronique secondaire de cibles minces à l'impact des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ .

Dissociation d'un ion di-atomique dans un solide

Lorsqu'un ion moléculaire rapide ($v > v_0$) pénètre dans un solide, il perd rapidement ses électrons de liaison au cours des interactions dans les premières couches atomiques du solide et les ions ainsi formés poursuivent leur parcours dans le solide en s'éloignant les uns des autres à cause de la répulsion coulombienne d'une part et des collisions multiples avec les noyaux des atomes cible d'autre part. Le phénomène d'interférences des interactions individuelles des ions fragments que nous avons déjà évoqué est directement fonction de la distance r_{ij} qui les sépare. On conçoit aisément que près de la surface d'entrée où les ions sont très proches les uns des autres, les effets collectifs sont maximaux. Par contre l'augmentation de la distance moyenne r_{ij} au fur et à mesure de la pénétration dans le solide a pour conséquence une atténuation progressive des effets collectifs jusqu'à leur disparition lorsque la distance limite r_{ij} est de l'ordre de grandeur de la distance d'écran dynamique $\lambda = v/\omega_p$ (ω_p est la fréquence plasma du solide) c'est à dire de quelques Å pour des protons dont l'énergie est comprise entre 100 keV et 2 MeV. Les ions interagissent alors indépendamment les uns des autres et l'effet global est une simple additivité des effets des ions individuels.

Explosion coulombienne simple

D'après BRANDT et RITCHIE [16], deux charges Z_1 et Z_2 initialement distantes de r_0 se retrouvent à une distance r après un temps t sous l'effet de la force de répulsion coulombienne F donnée par :

$$F(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r^2} \quad (1.10)$$

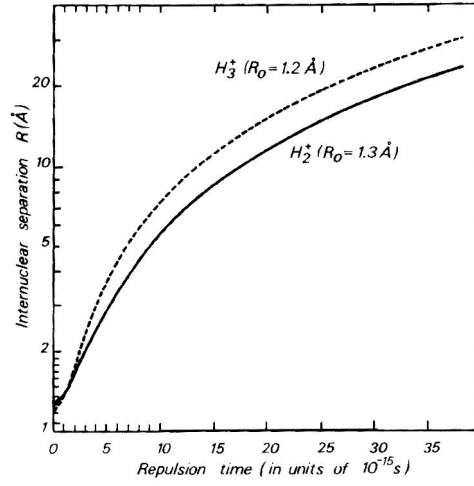


Figure 1.3 : Séparation internucléaire des protons constituant de H_2^+ et H_3^+ en fonction du temps de répulsion dans le cas d'une explosion coulombienne non écrantée [30].

L'énergie initiale E_0 dans le centre de masse du système constitué par les deux charges distantes de r_0 est alors :

$$E_0 = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r_0} = r_0 F(r_0) \quad (1.11)$$

L'énergie potentielle du système lorsque les deux charges sont distantes de r est $E(r) = rF(r)$. La conservation de l'énergie dans le repère du centre de masse (de masse réduite $\mu = \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}\right)^{-1}$) implique :

$$E_0 = rF(r) + \frac{1}{2}\mu v^2 \quad (1.12)$$

$$\frac{dr}{dt} = \sqrt{\frac{2Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 \mu} \left(\frac{1}{r_0} - \frac{1}{r}\right)} \quad (1.13)$$

$$dt = \sqrt{\frac{4\pi\epsilon_0 \mu}{2Z_1 Z_2 e^2}} \frac{dr}{\sqrt{\frac{1}{r_0} - \frac{1}{r}}} \quad (1.14)$$

si on pose $\xi = \frac{r}{r_0}$, on obtient finalement l'expression suivante de t :

$$\boxed{t = t_0 \left[\sqrt{\xi} \sqrt{\xi - 1} + \ln \left(\sqrt{\xi} + \sqrt{\xi - 1} \right) \right]} \quad (1.15)$$

où $t_0 = \sqrt{\frac{4\pi\epsilon_0 \mu r_0^3}{2Z_1 Z_2 e^2}}$. Si μ est exprimé en uma et r_0 en Å, alors $t_0 = 1.90 \sqrt{\frac{\mu r_0^3}{Z_1 Z_2}}$ fs.

La **figure 1.3** montre l'évolution en fonction du temps des distances internucléaires entre les constituants de H_2^+ et H_3^+ [30]. Les distances interatomiques initiales R_0 sont égales à $R_0 = 1.3$ et 1.2 Å pour H_2^+ et H_3^+ respectivement.

Explosion coulombienne écrantée

L'explosion coulombienne ayant lieu durant la traversée d'une feuille mince, il faut tenir compte de l'écrantage de la charge des ions par les électrons du milieu qui atténue la force de répulsion.

L'expression du potentiel coulombien est modifiée en introduisant un terme d'atténuation faisant intervenir la distance d'écran dynamique λ du solide :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{\lambda}\right) \quad (1.16)$$

Avec cette formulation du potentiel, on obtient l'expression suivante du temps t en fonction de $\xi = \frac{r}{r_0}$:

$$t = \sqrt{\frac{4\pi\epsilon_0 \mu r_0^2}{2Z_1 Z_2 e^2}} \int_1^{\xi_{final}} \left[\left(\frac{1}{r_0} + \frac{1}{\lambda} \right) \exp\left(-\frac{r_0}{\lambda}\right) - \left(\frac{1}{r_0 \xi} + \frac{1}{\lambda} \right) \exp\left(-\frac{r_0 \xi}{\lambda}\right) \right]^{-1/2} d\xi \quad (1.17)$$

qui n'est pas intégrable analytiquement mais numériquement.

Les calculs d'explosion coulombienne simple ou d'explosion coulombienne écrantée sont équivalents tant que la distance interatomique est inférieure à la distance d'écran dynamique λ .

Diffusion multiple

La diffusion multiple ou *multiple scattering*, est due aux collisions élastiques à petit angle des ions incidents avec les atomes d'un solide. Les distributions angulaires des ions diffusés ont été calculées par SIGMUND *et al.* [60]. Le calcul repose sur les hypothèses suivantes :

- les atomes du milieu sont répartis de façon homogène et aléatoire (*randium*),
- les collisions binaires sont à symétrie cylindrique,
- la perte d'énergie est négligeable,
- les déviations sont petites (angles $\leq 20^\circ$ d'après MOLIÈRE [46]),
- le potentiel d'interaction est de type THOMAS-FERMI et à symétrie sphérique.

Les distributions tabulées par SIGMUND *et al.* [60] permettent de déterminer le demi-angle de diffusion $\alpha'_{\frac{1}{2}}$ sans dimension à partir des grandeurs suivantes :

- a le rayon d'écran de THOMAS-FERMI :

$$a = 0.8853 a_0 \left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{-1/2} \quad (1.18)$$

où a_0 est le rayon de BOHR, Z_1 et Z_2 les numéros atomiques du projectile et de la cible,

- τ l'épaisseur de la cible en unités réduites :

$$\tau = \pi a^2 N d \quad (1.19)$$

où N est le nombre de noyaux cibles par unité de volume, et d l'épaisseur de la cible,

$\alpha_{\frac{1}{2}}$ en radians est déduit de $\alpha'_{\frac{1}{2}}$ à l'aide de la formule suivante :

$$\alpha_{\frac{1}{2}} = \frac{2Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 E a} \alpha'_{\frac{1}{2}} \quad (1.20)$$

où E est l'énergie de l'ion incident. La demi-largeur de la déviation latérale de l'ion incident correspondant à l'angle de diffusion $\alpha_{1/2}$ en sortie d'une cible d'épaisseur d est égale à $d\alpha_{1/2}$.

En faisant l'hypothèse simplificatrice que la diffusion multiple agit sur chaque proton indépendamment de la répulsion coulombienne, on peut exprimer l'incertitude sur la distance r entre deux protons de la façon suivante :

$$\boxed{\Delta r = \sqrt{(d\alpha_{1/2})^2 + (d\alpha_{1/2})^2}} \quad (1.21)$$

Nous reviendrons sur ces effets de la dissociation des ions polyatomiques dans la discussion de nos résultats d'émission électronique à l'impact des ions H_2^+ et H_3^+ .

1.2 Description de l'émission électronique secondaire

On distingue deux types d'émission électronique suivant l'énergie du projectile incident : l'émission électronique potentielle, ou *Potential Emission* (PE) due à l'énergie potentielle de l'ion incident, stockée sous forme d'énergie d'ionisation ; et l'émission électronique cinétique, ou *Kinetic Emission* (KE) due à des transferts d'énergie collisionnels. Après une brève présentation du phénomène d'émission électronique potentielle, nous nous intéresserons plus particulièrement à l'émission cinétique qui est l'objet de nos travaux.

1.2.1 Emission électronique secondaire potentielle

L'émission électronique potentielle résulte du réarrangement de l'énergie potentielle de l'ion incident à l'approche des atomes de surface du solide. En première approximation, les résultats expérimentaux montrent qu'à basse vitesse ($v \leq 0.2v_0$) le rendement électronique est indépendant de la vitesse et ne dépend que de l'énergie potentielle de l'ion. Au delà de $0.2v_0$ (ou pour des énergies incidentes supérieures à 1 keV/u pour des ions monochargés) la dépendance du rendement électronique avec la vitesse résulte de la participation de l'émission cinétique, qui devient le processus dominant.

L'émission électronique potentielle survient lors du réarrangement de l'énergie potentielle de l'ion incident dans le système ion-atome cible. Il se produit des processus résonnants rapides (dont les durées caractéristiques s'échelonnent entre 10^{-16} et 10^{-13} s) près de la surface. On distingue parmi ceux-ci l'ionisation résonnante, la neutralisation résonnante et la neutralisation quasi-résonnante (neutralisation résonnante sur des niveaux de cœur). Ces processus ne conduisent pas directement à l'émission d'électrons ; ce sont les électrons de désexcitation d'atomes excités et de neutralisation AUGER de l'ion incident, et dans une moindre mesure ceux d'autoionisation qui en sont responsables. Notons ici que si l'émission cinétique est possible sur toutes les cibles à partir d'une énergie incidente seuil, l'émission potentielle n'est pas systématique pour toutes les combinaisons projectile-surface. En effet, dans le cas d'une neutralisation par effet AUGER l'énergie cinétique de l'électron AUGER s'écrit :

$$E_A = E'_i - \alpha - \beta \geq 0 \quad (1.22)$$

E'_i représentant l'énergie d'ionisation du projectile près de la surface, et α et β les énergies de liaison des électrons actifs dans la bande de conduction ou de valence du solide. Si l'on minimise α et β à la fonction d'extraction ϕ de la surface de la cible, il vient :

$$E'_i \geq 2\phi \quad (1.23)$$

Pour une désexcitation AUGER intervenant après une neutralisation résonnante, on a :

$$E_A = E'_x - \alpha \geq 0 \quad (1.24)$$

E'_x représentant l'énergie d'un état excité près de la surface, qui vaut au maximum $E'_i - \phi$, ce qui nous redonne la condition $E'_i \geq 2\phi$.

Une revue des différents mécanismes d'émission potentielle assortie de données expérimentales peut-être trouvée dans les ouvrages de CARTER *et al.* [17] et VARGA *et al.* [70].

Tous les processus sont représentés sur la **figure 1.4** dans le cas d'une cible métallique [17].

Signalons qu'à basse énergie, BARAGIOLA *et al.* [6] ont proposé à partir d'un ajustement de données expérimentales une relation empirique du rendement électronique de l'émission potentielle induite par des ions monochargés :

$$\gamma_p = 0.032(0.78E_i - 2\phi) \quad (1.25)$$

où l'énergie d'ionisation de l'ion E_i et le travail d'extraction ϕ sont donnés en eV. Cette relation montre à l'évidence que pour la plupart des métaux ($\phi \approx 3 - 5$ eV) et pour des ions monochargés, le rendement de l'émission potentielle est faible, largement inférieur à 1. L'émission électronique potentielle avec des ions multichargés fait l'objet des travaux les plus récents. La plupart de ces travaux sont présentés dans l'article de revue de VARGA *et al.* [70]. Nous mentionnerons en plus des études récentes faites à partir de mesures de la statistique d'émission [69].

1.2.2 Emission électronique secondaire cinétique

Contrairement à l'émission potentielle, l'émission cinétique se caractérise par une production d'électrons qui n'est pas confinée à la surface, mais se produit tout au long de la trajectoire du projectile. Cependant, les électrons ne pourront avoir une chance de sortir du solide que s'ils sont produits près de la surface sur une profondeur moyenne λ_e appelée profondeur d'échappement des électrons.

On sépare généralement l'émission électronique cinétique en trois étapes :

- l'excitation des électrons dans le solide,
- le transport des électrons libérés jusqu'à la surface,
- la transmission des électrons à travers la surface.

Seule la phase de production est dépendante des caractéristiques du projectile (ion lourd, ion léger ou électron) et de sa vitesse. Le transport ainsi que la transmission des électrons secondaires sont dépendants des propriétés de la cible.

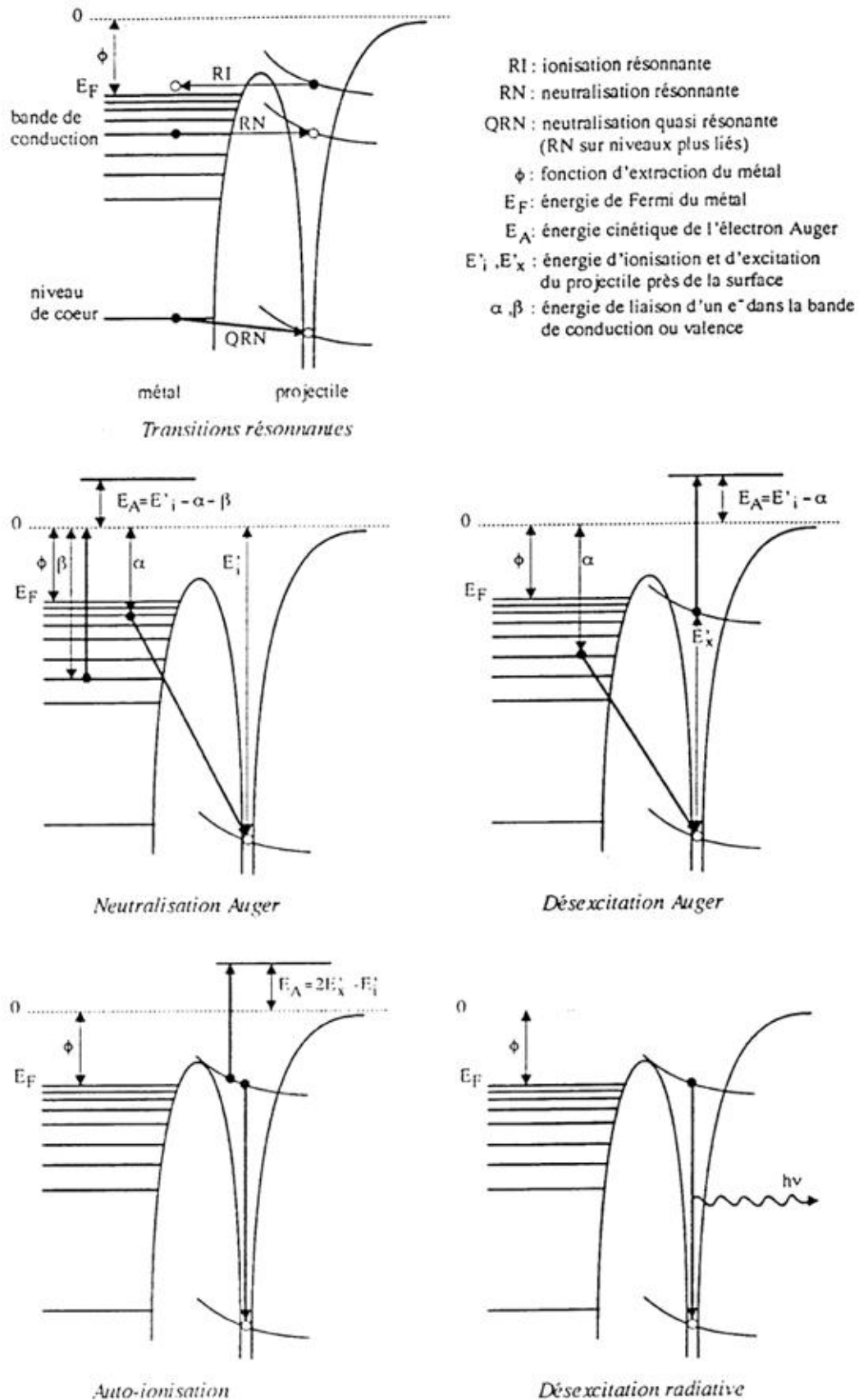


Figure 1.4 : Récapitulatif des différents processus de l'émission électronique potentielle.

Production

L'excitation des électrons de la cible, c'est à dire la génération d'électrons à des vitesses supérieures à celles de l'équilibre thermique peut se faire de plusieurs façons :

- excitation directe par collisions binaires projectile-électron des électrons de conduction ou de valence de la cible,
- excitation d'électrons de conduction ou de valence par désexcitation de plasmons, après une excitation collective provoquée par le projectile,
- excitation d'électrons de cœur par collisions inélastiques,
- excitation d'électrons de conduction ou de valence lors d'une pointe thermique (ou *thermal spike*) autour de l'impact du projectile (émission thermoïonique),
- excitation d'électrons de cœur par promotion dans des collisions atome-atome.

Tous ces processus contribuent au ralentissement du projectile. Leur combinaison donne le pouvoir d'arrêt électronique S_e de la cible pour le projectile incident. La corrélation entre le pouvoir d'arrêt électronique et l'émission électronique est établie depuis longtemps. Les premières théories de BETHE [11] et STERNGLOSS [65] en tenaient déjà compte.

Rappelons ici que l'émission d'électrons par la cible n'est possible que dans la mesure où l'énergie des électrons secondaires leur permet de franchir la barrière de surface ϕ . Cela constitue un critère de sélection sur les paramètres d'impact ainsi que sur les mécanismes d'excitation conduisant à l'émission secondaire. Il faut bien faire la distinction entre pouvoir d'arrêt et émission électronique, car *quand il y a émission secondaire il y a pouvoir d'arrêt électronique, bien que l'existence du pouvoir d'arrêt n'entraîne pas nécessairement l'éjection d'électrons* [34].

Excitation d'électrons de conduction ou de valence par collisions directes projectile-électrons

Ce mécanisme s'applique seulement dans le cas des métaux, car la densité des électrons libres y est suffisamment importante ($> 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) pour que la probabilité de collision devienne significative.

En considérant la collision projectile-électron comme un problème de mécanique classique à deux corps, le transfert d'énergie cinétique est donné par

$$E_e = E_{e,max} \cos^2 \alpha \quad (1.26)$$

où α est l'angle entre la trajectoire de l'électron éjecté et celle de l'ion incident, et $E_{e,max}$ le transfert maximum d'énergie ($\alpha = 0$) :

$$E_{e,max} = 4 \frac{M_1 m}{(M_1 + m)^2} E_p \approx 4 \frac{m}{M_1} E_p = 2m v_p^2 \quad (1.27)$$

Si on tient compte de la vitesse v_e des électrons dans le solide, pour des électrons au niveau de FERMI, ($v_e = v_F$) dont la vitesse v_e est en direction opposée à celle du projectile, le transfert maximum s'écrit alors :

$$E_{e,max} = 2m v_p (v_p + v_F) \quad (1.28)$$

La condition de passage de la barrière de surface $E_{e,max} \geq \phi$ définit une vitesse seuil du projectile pour l'émission d'électrons :

$$v_{p,th} = \frac{1}{2}v_F \left[\sqrt{1 + \frac{\phi}{E_F}} - 1 \right] \quad (1.29)$$

En dessous de cette vitesse, l'émission d'un électron est impossible par collision directe ion-électron. Ces excitations à paramètre d'impact nul sont très peu probables. Pour des cibles de carbone ($E_F = 18$ eV, $\phi = 5$ eV) on obtient une vitesse seuil de $1.6 \cdot 10^7$ cm/s, soit une énergie seuil voisine de 150 eV/uma. Les électrons excités par les collisions binaires proches (ou électrons δ) sont fortement dirigés vers l'avant. Ils subiront un grand nombre de collisions avec les électrons et les noyaux de la cible que nous évoquerons dans le paragraphe consacré au transport des électrons jusqu'à la surface du solide. L'équation (1.29) permet juste d'estimer une valeur minimale de la vitesse du projectile pour ce type d'excitation.

Excitation d'électrons de conduction ou de valence par désexcitation de plasmons

Les métaux peuvent subir des oscillations de plasma de fréquence ω_p dues au mouvement du gaz d'électrons quasi-libres par rapport au réseau rigide formé par l'ensemble des noyaux et des électrons de cœur (cœurs ioniques). Une charge perturbant le milieu déclenchera une réaction d'écrantage se traduisant par un déplacement des électrons quasi-libres. Il se crée ainsi une polarisation locale du milieu, la neutralisation du solide étant établie sur des longueurs supérieures à la longueur de DEBYE.

Le passage de particules chargées à travers une cible constitue une telle perturbation. Si le passage s'effectue à une vitesse inférieure à celle des électrons, le système réagira adiabatiquement à son passage et il n'y aura ni excitation électronique, ni ralentissement électronique par ce processus collectif durant la traversée. Par contre, si la vitesse du projectile incident est de l'ordre de la vitesse de FERMI, des oscillations du gaz d'électrons libres auront lieu tout au long de sa trajectoire. L'énergie de ces plasmons est de l'ordre de $\hbar\omega_p$ ($\hbar\omega_p \approx 22$ eV dans le carbone). La désexcitation des plasmons se fait par création de paire électron-trou d'énergie inférieure ou égale à $\hbar\omega_p$ dans la bande de valence.

Dans la théorie diélectrique du ralentissement des ions dans les solides de LINDHARD et WINTHER [45], la vitesse seuil d'excitation des plasmons dans l'aluminium est donnée égale à $1.24 \times v_0$ (où v_0 est la vitesse de BOHR). Expérimentalement, une vitesse seuil de $2.6 \cdot 10^8$ cm/s a été déterminée pour l'émission électronique due à la désexcitation des plasmons dans une cible d'aluminium bombardée par un faisceau de protons [52], ce qui est en bon accord avec la théorie. RÖSLER et BRAUER [52] [54] [55], dans une étude théorique des contributions respectives des électrons quasi-libres, des électrons de cœur et des plasmons, pour des protons incidents sur des cibles d'aluminium remarquent que : *“La contribution des électrons de conduction et des désexcitations des plasmons joue un rôle primordial comparé à celle des électrons de cœur dans l'émission secondaire”*. Par comparaison avec la théorie du pouvoir d'arrêt électronique, ils arrivent à la conclusion que l'excitation des électrons de cœur est de loin plus importante pour le ralentissement des protons (entre 20 et 800 keV dans l'aluminium) que pour l'émission électronique secondaire.

Excitations d'électrons de cœur par collisions proches des projectiles incidents

Nous ne nous intéresserons ici qu'au cas où le projectile peut être considéré comme une charge ponctuelle, ce qui est le cas des protons ou des ions totalement épluchés. La collision peut être considérée comme une interaction coulombienne entre le projectile et un électron lié. L'état initial de l'électron lié est représenté par une fonction d'onde hydrogénoïde dans un potentiel atomique écranté, l'état final par un électron libre et un ion à l'état fondamental. L'effet du projectile est traité comme une perturbation sur l'atome cible.

Dans le cas de l'ionisation d'un électron de cœur, l'énergie d'ionisation mise en jeu peut être perdue pour l'émission électronique secondaire, si lorsque l'atome ayant perdu son électron se désexcite par voie radiative (émission X) et que le photon ainsi émis ne provoque pas à son tour d'ionisation. Dans le cas de transitions non radiatives, ou émission AUGER, l'énergie libérée lors de la désexcitation de l'atome est transférée à un autre électron, qui emporte alors la différence des énergies de liaison des deux couches concernées. La fraction relative des transitions radiatives est appelée rendement de fluorescence. Le rendement de fluorescence ω_X est donné par les relations suivantes [27, p. 266] :

$$\boxed{\omega_X = \frac{W_X/W_A}{1 + W_X/W_A}} \quad (1.30)$$

$$\frac{W_X}{W_A} = \left(-a + bZ - cZ^3 \right)^4 \quad (1.31)$$

où $a = 6.4 \cdot 10^{-2}$, $b = 3.4 \cdot 10^{-2}$ et $c = 1.03 \cdot 10^{-6}$. Il augmente avec le numéro atomique de l'atome cible. Dans le cas de l'ionisation d'un électron d'une couche K , les deux voies de désexcitation ont par exemple une probabilité égale pour un atome de cuivre, par contre pour un atome de carbone qui a un rendement de fluorescence de $4 \cdot 10^{-4}$ la désexcitation se fera par transition AUGER. L'électron de désexcitation AUGER peut provenir de l'atome lui-même ou encore de la bande de valence du solide, dans tous les cas l'électron libéré possède non seulement une énergie suffisante à sa sortie du solide, mais peut de plus créer à son tour des cascades d'électrons lents.

Excitation d'électrons de conduction ou de valence par pointes thermiques

L'émission électronique d'origine thermique, ou émission thermoïonique, est due à un transfert d'énergie dans les interactions phonon-électron. Dans ce cas, il faut prendre en compte le couplage entre l'énergie cinétique due à l'agitation thermique des noyaux et la partie haute énergie des électrons de la distribution de FERMI.

Une augmentation de l'énergie cinétique des noyaux est également provoquée par les collisions nucléaires avec le projectile incident. La durée de vie d'une cascade de collisions nucléaires est ordinairement de l'ordre d'une vibration thermique du réseau cristallin, donc trop courte pour transférer une quantité d'énergie suffisante aux électrons de conduction. Par contre, la durée de vie des cascades de collisions de densités d'énergie très élevées (> 1 eV/atome) est de 10 à 100 fois plus grande. Il est concevable que pour des durées de vie aussi grandes, une fraction de l'énergie cinétique des noyaux cibles soit transmise aux électrons du milieu, créant ainsi une source d'émission électronique secondaire. De telles cascades de collisions où la majorité des atomes est en mouvement sont appelées "*pointes de collisions nucléaires*" ou "*pointes thermiques*". Elles peuvent être générées

par exemple par des agrégats d'atomes lourds à relativement basse énergie dans le domaine des collisions nucléaires. Les effets des pointes thermiques ont souvent été proposés pour expliquer la non-linéarité entre le rendement électronique et le nombre de constituants de très gros projectiles [12]. Bien évidemment ce processus de production d'électrons secondaires n'intervient pas dans le cadre de nos expériences.

Excitations d'électrons de cœur par promotion électronique dans des collisions atome-atome

Ce mécanisme, comme le précédent, est relatif aux projectiles lourds. Dans le cas d'ions lourds à basse vitesse, si on considère les différents intervenants d'une collision comme une molécule dont les distances interatomiques varient en fonction du temps, certaines orbitales sont décalées vers les hautes énergies durant la phase d'approche du projectile et recouvrent totalement ou partiellement celles de l'ion incident. Il se produit alors éventuellement un échange de charges entre ces deux atomes, et si les électrons promus ne retournent pas sur leurs orbitales respectives après l'interaction, l'atome cible se trouve alors dans un état excité. Il peut ensuite se désexciter par autoionisation et émettre ainsi un électron énergétique.

Transport des électrons secondaires

Le projectile provoque des excitations électroniques tout au long de sa trajectoire dans le solide. L'émission de ces électrons de première génération produits dans le solide n'est possible que s'ils arrivent près de la surface avec une énergie supérieure au travail d'extraction. Sur leur parcours dans le solide, ces électrons subissent de nombreuses collisions, que ce soit avec les noyaux atomiques de la cible, les électrons de cœur et les électrons libres. Lors des collisions avec les noyaux cibles, les électrons ne subissent pas une grande perte d'énergie. Par contre leurs trajectoires subissent d'importants changements de direction, si bien que la distribution initiale fortement piquée vers l'avant se transforme après plusieurs collisions élastiques [61] [68] en une distribution isotrope. Les collisions avec des électrons libres de la cible affectent plus leur énergie. Dans des matériaux à forte densité d'électrons libres (comme les métaux, où $n \approx 10^{22} \text{ cm}^{-3}$) le libre parcours moyen des électrons est de l'ordre de $\lambda = 1 \text{ nm}$, pour des énergies comprises entre $1 \leq E \leq 100 \text{ eV}$. En conséquence, l'énergie transférée à un électron de première génération sera partagée entre un grand nombre d'électrons secondaires conduisant ainsi au développement d'une cascade d'électrons. Ce processus de multiplication en cascade des électrons excités conduit à une distribution énergétique des électrons secondaires émis quasi-indépendante de l'énergie du projectile incident et de la combinaison projectile-cible.

Dans les théories les plus élaborées, le processus de diffusion est décrit par les libres parcours moyens de collisions élastiques et inélastiques, (ou par le pouvoir d'arrêt à basse énergie de ces électrons [57]) alors que le développement des cascades est traité par la théorie du transport. L'extension spatiale de la cascade est déterminée principalement par le parcours $R(E')$ de l'électron de première génération qui en est à l'origine, lequel est une fonction de son énergie initiale E' . $R(E')$ est ici la distance moyenne parcourue par l'électron avant que son énergie ne devienne inférieure au

niveau du vide. La forme de la cascade est déterminée par la distribution angulaire des électrons de première génération. Pour des projectiles légers rapides, cette distribution est d'autant plus piquée vers l'avant que l'énergie du projectile est grande et que l'énergie transférée aux électrons de première génération est grande [6]. La propagation des électrons a été traitée analytiquement, numériquement, et à l'aide de simulations Monte-Carlo par un grand nombre de chercheurs, DUBUS *et al.* [23] [24] [25], SCHOU [57], RÖSLER et BRAUER [52] [53] [55], DEVOOGHT *et al.* [19].

Dans les théories semi-empiriques, le phénomène de cascade est négligé et l'on ne prend en compte que le processus de diffusion en introduisant un libre parcours moyen $l(E_i)$ des électrons. La probabilité $f(x, E_i)$ d'un électron d'énergie E_i d'atteindre la surface à partir d'une profondeur donnée x s'écrit :

$$f(x, E_i) \propto \exp\left(-\frac{x}{l(E_i) \times \cos \theta}\right) \quad (1.32)$$

où θ représente la direction de propagation des électrons par rapport à la normale à la surface. $l(E_i)$ doit prendre en compte à la fois le processus de diffusion élastique et inélastique [61]. C'est une fonction qui dépend du spectre en énergie des électrons et de la nature du solide. En général les théories semi-empiriques négligent la dépendance en énergie de $l(E_i)$ et utilisent un libre parcours moyen constant L .

Le libre parcours moyen des électrons peut être utilisé pour estimer une profondeur moyenne d'échappement des électrons secondaires. Les valeurs expérimentales de ces libre parcours moyens varient de 5 à 20 Å dans les métaux et semi-conducteurs pour des électrons dont les énergie vont jusqu'à quelques centaines d'électron-volts, et peuvent être très supérieures dans des isolants. Selon SEILER [59], la profondeur moyenne d'échappement serait environ cinq fois le libre parcours moyen. L'émission électronique est donc un bon moyen d'investigation sur la surface des solides.

Passage de la barrière de surface

Le potentiel électrostatique d'une surface présente des ondulations à l'échelle atomique, petites en comparaison aux longueurs d'ondes associées aux électrons sortant. Cela justifie l'approximation de la surface plane [7]. C'est aussi un point sur lequel les différents modèles sont le plus en accord.

Un électron excité dans le solide peut franchir la surface du solide si son énergie cinétique E_i est suffisamment élevée pour franchir la barrière de potentiel de surface. La nature de la barrière dépend de la structure électronique de la cible. La hauteur de cette barrière est $U_S = E_F + \phi$ si les énergies cinétiques internes sont référencées par rapport au bas de la bande de conduction. E_F est l'énergie du niveau de FERMI et ϕ la fonction d'extraction.

Le passage de la barrière de surface se passe de façon analogue à une réfraction en optique, l'énergie incidente E_i est diminuée lors de la transmission et l'énergie de l'électron émergent E_e est égale à :

$$E_e = E_i - U_S \quad (1.33)$$

et les angles d'incidence θ_i et d'émergence θ_e sont liés par la relation :

$$k_e \sin \theta_e = k_i \sin \theta_i \quad (1.34)$$

où k_i et k_e sont les moments incident et émergent. Le changement de direction de l'électron est aisément calculé à l'aide des **expressions (1.33) et (1.34)** :

$$\sin(\theta_e) = \sin(\theta_i) \sqrt{1 + \frac{U_S}{E_i}} \quad (1.35)$$

On remarque que l'angle en sortie est toujours supérieur à l'angle d'incidence, et que pour une énergie donnée il existe un cône d'échappement au delà duquel il n'y a pas de transmission. On le calcule en résolvant l'**équation (1.35)** pour $\theta_e = \pi/2$. Les électrons dont les angles d'incidence θ_i (par rapport à la normale à la surface à l'intérieur du solide) sont supérieurs à :

$$\theta_{i\max} = \arccos \sqrt{\frac{U_S}{E_i}} \quad (1.36)$$

seront réfléchis.

La probabilité de transmission T dépend donc de l'allure de la distribution angulaire des électrons atteignant la surface. Dans l'approximation classique, quand la diffusion élastique peut être négligée, on peut considérer que les électrons se déplacent en ligne droite, et que leur nombre décroît exponentiellement en $\exp(-z/L \exp(-2/L))$ (distribution de LANDAU). On a alors :

$$T(E) = \frac{1}{2} \frac{E_e}{E_i} \quad (1.37)$$

D'autre part, quand la diffusion élastique est importante, le coefficient de transmission peut être calculé en supposant que les électrons arrivent à la surface de façon isotrope. Dans ce cas :

$$T(E) = \frac{1}{2} \left(1 - \sqrt{\frac{U_S}{E_i}} \right) \quad (1.38)$$

Une conséquence de tout ce qui précède est que le spectre en énergie des électrons émis diffère notablement de celui des électrons internes : $N_i(x, E_i, \Omega_i) dE_i d\Omega_i$ représente la densité des électrons internes occupant les états $(E_i, E_i + dE_i)$ et $(\Omega_i, \Omega_i + d\Omega_i)$ à une profondeur x de la surface. $N_i(x, E_i, \Omega_i)$ est la distribution solution de l'équation de BOLTZMANN, et la densité de flux correspondante est :

$$j_i(x, E_i, \Omega_i) = N_i(x, E_i, \Omega_i) \times v_i \cos \theta_i \quad (1.39)$$

et en surface ($x = 0$) :

$$j_i(0, E_i, \Omega_i) \equiv j_i(E_i, \Omega_i) = N_i(E_i, \Omega_i) \times v_i \cos \theta_i \quad (1.40)$$

Les conditions de conservation du flux à l'interface solide-vide impliquent :

$$j_i(E_i, \Omega_i) dE_i d\Omega_i = j_e(E_e, \Omega_e) dE_e d\Omega_e \quad (1.41)$$

d'où l'on tire $dE_i = dE_e$, et en différentiant l'**équation (1.35)**, il vient :

$$j_e(E_e, \Omega_e) = j_i(E_i, \Omega_i) \frac{E_e}{E_e + U_S} \frac{\cos \theta_e}{\cos \theta_i} \quad (1.42)$$

L'**équation (1.42)** exprime la déviation de la distribution du flux des électrons émis par rapport au flux des électrons internes. Cela se traduit par un spectre en énergie des électrons émis qui part de l'origine, croît rapidement jusqu'à un maximum avant de rejoindre le spectre des électrons internes à haute énergie. Le spectre des électrons internes, par contre, présente une décroissance monotone de la forme E^{-m} , avec $m \approx 2 - 3$ [58] [61].

1.3 Le modèle de Sternglass

Ce modèle semi-empirique développé par STERNGLASS en 1957 permet d'évaluer le rendement électronique arrière d'une cible métallique. Afin de décrire l'étape de production au moyen de la théorie du ralentissement de BETHE, STERNGLASS suppose que les projectiles sont totalement épluchés et ont une énergie suffisante pour satisfaire aux conditions de validité de cette théorie. Il admet aussi que les électrons émis par la cible proviennent d'une profondeur relativement faible, la profondeur d'échappement, ce qui permet de supposer que le pouvoir d'arrêt pour l'ion incident est constant sur la profondeur d'échappement.

Pour décrire le processus de production des électrons secondaires, il suppose que les interactions entre les particules incidentes et les atomes de la cible se divisent en deux groupes :

- les collisions distantes correspondant à des grands paramètres d'impact produisent des électrons lents avec une distribution isotrope ;
- les collisions proches, à faible paramètre d'impact donnent naissance à des électrons δ très énergétiques, dont la distribution est fortement piquée vers l'avant, et qui sont à l'origine du développement des cascades d'électrons lents.

Ainsi, si W désigne la perte d'énergie moyenne du projectile pour la production d'un électron secondaire ($W \approx 25$ eV), et $(S_e)_d$ et $(S_e)_c$ les pouvoirs d'arrêt électroniques liés aux collisions distantes et proches, alors le nombre d'électrons lents créés dans la cible par unité de longueur dx à une profondeur x par chacun de ces processus est respectivement :

$$n_d(x) = \frac{(S_e)_d}{W} \quad (1.43)$$

$$n_c(x) = \frac{(S_e)_c}{W} f(v, x) \quad (1.44)$$

où $f(v, x)$ est un facteur dépendant de la vitesse du projectile qui traduit la fraction de $(S_e)_c$ disponible pour la production d'électrons lents par les électrons δ . Pour des matériaux de numéro atomique faible ($Z \leq 30$) :

$$f(v, x) = 1 - \exp\left(-\frac{x}{\lambda_\delta(v)}\right) \quad (1.45)$$

La longueur de diffusion $\lambda_\delta(v)$ est la longueur sur laquelle les électrons δ perdent leur énergie en créant des électrons secondaires lents.

Pour des projectiles suffisamment rapides ($v \geq 2v_0 Z_1^{2/3}$), on peut considérer que la loi d'équipartition du pouvoir d'arrêt de BOHR-BETHE [14] [9] est approximativement respectée. Par conséquent, il est possible d'écrire que :

$$(S_e)_d \approx (S_e)_c \approx \frac{1}{2} S_e \quad (1.46)$$

Ainsi le nombre total d'électrons lents produits dans la cible par unité de longueur dx à la profondeur x est :

$$n(x) = n_d(x) + n_c(x) = \frac{1}{2} \frac{S_e}{W} (1 + f(v, x)) \quad (1.47)$$

Le déplacement des électrons secondaires est alors traité comme un problème de diffusion d'électrons dans un gaz, et la probabilité pour que des électrons ainsi créés à la profondeur x atteignent la face d'entrée de la cible et la franchissent est alors :

$$P(x) = AT \exp\left(-\frac{x}{\lambda_{se}}\right) \quad (1.48)$$

où λ_{se} est une longueur de diffusion dont la valeur est proche de celle du libre parcours moyen inélastique, A une constante déterminée par la distribution initiale des électrons secondaires au sein de la cible ($A \approx 0.6$ pour une distribution isotrope) et T le coefficient de transmission de la surface, évalué à l'aide de l'expression suivante :

$$T = 1 - \sqrt{\frac{E_F + \phi}{E_i}} \quad (1.49)$$

avec E_F et ϕ représentant respectivement le niveau de FERMİ et la fonction d'extraction de la cible.

Le rendement électronique s'obtient ensuite à partir du rendement différentiel :

$$d\gamma(x) = n(x)P(x)dx \quad (1.50)$$

que l'on doit intégrer dans le cas d'une cible épaisse pour x variant de 0 à l'infini :

$$\gamma = \int_0^\infty d\gamma(x)dx \quad (1.51)$$

qui se simplifie :

$$\gamma = \frac{1}{2} \frac{S_e}{W} AT \lambda_{se} (1 + F(v)) \quad (1.52)$$

avec, pour des cibles constituées de matériaux légers ($Z_2 \leq 30$) :

$$F(v) = \frac{1}{1 + \lambda_\delta(v)/\lambda_{se}} \quad (1.53)$$

Dans son modèle, STERNGLASS estime que :

$$\frac{\lambda_\delta(v)}{\lambda_{se}} \approx \frac{1}{180} \frac{E}{M} \quad (1.54)$$

où E et M sont l'énergie et la masse du projectile exprimées respectivement en keV et en uma.

Par un raisonnement analogue, KOSCHAR *et al.* [39] ont étendu ce modèle au cas des cibles minces. Pour tenir compte des déviations éventuelles de la loi d'équipartition du pouvoir d'arrêt, un coefficient B fonction de l'énergie du projectile incident a été introduit ($B = 0.5$ dans le modèle de STERNGLASS). Pour des projectiles rapides tels que $\lambda_\delta(v) \gg \lambda_{se}$, l'intégration de $d\gamma(x)$ pour x compris entre 0 et d (épaisseur de la cible) donne les rendements arrière γ_B et avant γ_F suivants :

$$\gamma_B = \frac{S_e(x=0)}{W} AT \lambda_{se} (1 - B) \left[1 - \exp\left(-\frac{d}{\lambda_{se}}\right) \right] \quad (1.55)$$

$$\gamma_F = \frac{S_e(x=d)}{W} AT \lambda_{se} \left[1 - B \exp\left(-\frac{d}{\lambda_\delta(v)}\right) - (1 - B) \exp\left(-\frac{d}{\lambda_{se}}\right) \right] \quad (1.56)$$

avec $S_e(x=0)$ et $S_e(x=d)$ représentant le pouvoir d'arrêt du projectile à l'entrée et à la sortie de la cible, respectivement.

Ces rendements arrivent à saturation dès que $d \gg \lambda_{se}$ à l'arrière, ou que $d \gg \lambda_\delta$ à l'avant :

$$\boxed{\gamma_B = \frac{S_e(x=0)}{W} AT \lambda_{se} (1 - B)} \quad (1.57)$$

$$\boxed{\gamma_F = \frac{S_e(x=d)}{W} AT \lambda_{se}} \quad (1.58)$$

Pour des cibles très minces, si on néglige la variation du pouvoir d'arrêt en cours de traversée, on a :

$$S_e(x=0) = S_e(x=d) \quad (1.59)$$

sinon, on peut utiliser l'approximation suivante :

$$\frac{S_e(x=0)}{S_e(x=d)} = \frac{Z_1^{*2}(x=0)}{Z_1^{*2}(x=d)} \quad (1.60)$$

On peut remarquer que le rendement avant est prévu supérieur au rendement arrière. D'après ROTHARD *et al.* [56], le rapport de ces deux grandeurs est égal à :

$$R = \frac{\gamma_F}{\gamma_B} = \frac{S_e(x=d)}{S_e(x=0)} \left[1 - \frac{B}{1 + \lambda_{se}/\lambda_\delta(v)} \right]^{-1} \quad (1.61)$$

Pour des projectiles suffisamment rapides, les résultats obtenus par le modèle de STERNGLASS sont en accord avec les résultats expérimentaux. Sa principale faiblesse réside dans l'introduction de nombreuses grandeurs qui n'ont pas toutes un sens physique très précis et qui sont parfois difficiles à évaluer.

1.4 Le modèle de Schou

Les théories du transport développées pour calculer les rendements électroniques font appel à des concepts issus de la neutronique. L'originalité du modèle de SCHOU [57] [58] vient de l'utilisation de grandeurs macroscopiques (flux, densités électroniques, ...). Il est basé sur la théorie des cascades d'ionisation et la diffusion des électrons secondaires est traitée par un système d'équations de transport de BOLTZMANN. Ce modèle est inspiré du modèle de SIGMUND [62] pour la pulvérisation des surfaces (émission secondaire d'ions et d'atomes).

Cette théorie a pour but de calculer l'émission électronique arrière induite par des protons ou des électrons. La cible est un milieu infini dont les constituants sont disposés aléatoirement (*randium*) coupé par une surface d'entrée plane. Les projectiles ont une incidence normale. L'hypothèse d'un milieu infini autorise certains électrons rétrodiffusés à passer plusieurs fois la surface et donc à les compter autant de fois, ce qui est inexact. Par ailleurs, le traitement des plasmons est incomplet, car les électrons résultant de leur désexcitation ne sont pas pris en compte.

Supposons que $\nu(\varepsilon_0, x)dx$ désigne le nombre moyen d'électrons d'énergie ε_0 produits dans une zone d'épaisseur dx centrée autour de la profondeur x . Ces électrons sont des électrons primaires

et des électrons de cascade. Leur nombre est directement relié à la perte d'énergie électronique du projectile. Si celle-ci peut être considérée comme constante sur le parcours de la particule incidente, on peut alors dire que $\nu(\varepsilon_0, x)$ varie peu avec la profondeur x et que l'on a :

$$\nu(\varepsilon_0, x) \approx \nu(\varepsilon_0, 0) \quad (1.62)$$

En supposant que la distribution angulaire des électrons secondaires est isotrope, SCHOU a établi que le nombre d'électrons d'énergie comprise entre ε_0 et $\varepsilon_0 + d\varepsilon_0$ arrivant à la surface ($x = 0$) du solide dans l'angle solide $d\vec{\Omega}_0$ et par particule incidente est :

$$F(\varepsilon_0, \vec{\Omega}_0) d\varepsilon_0 d\vec{\Omega}_0 \approx \nu(\varepsilon_0, 0) \frac{d\varepsilon_0}{\left| \frac{d\varepsilon_0}{dx} \right|} |\cos \theta_0| \frac{d\vec{\Omega}_0}{4\pi} \quad (1.63)$$

où $|d\varepsilon_0/dx|$ représente la perte d'énergie d'électrons d'énergie ε_0 et θ_0 l'angle entre la direction des électrons et la normale à la surface.

Le passage de la barrière de surface $U_s = E_F + \phi$ s'effectuant comme dans les modèles semi-empiriques :

$$\varepsilon_0 \cos^2 \theta_0 - U_s = \varepsilon_1 \cos^2 \theta_1 \quad (1.64)$$

$$\varepsilon_0 \sin^2 \theta_0 = \varepsilon_1 \sin^2 \theta_1 \quad (1.65)$$

où ε_1 est l'énergie de l'électron après transmission et θ_1 l'angle de sortie par rapport à la normale. L'énergie de l'électron émergent ε_1 est :

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_0 - U_s \quad (1.66)$$

et sa probabilité de transmission :

$$T = 1 - \frac{U_s}{\varepsilon_0} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0} \quad (1.67)$$

Le nombre d'électrons d'énergie comprise entre ε_1 et $\varepsilon_1 + d\varepsilon_1$ émis par la cible dans l'angle solide élémentaire $d\vec{\Omega}_1$ autour de $\vec{\Omega}_1$ et par projectile est donc :

$$F(\varepsilon_1, \vec{\Omega}_1) d\varepsilon_1 d\vec{\Omega}_1 = \frac{d^2\gamma}{d\varepsilon_1 d\vec{\Omega}_1} d\varepsilon_1 d\vec{\Omega}_1 \approx \nu(\varepsilon_0, 0) \frac{d\varepsilon_1}{\left| \frac{d\varepsilon_0}{dx} \right|} \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0} |\cos \theta_1| \frac{d\vec{\Omega}_1}{4\pi} \quad (1.68)$$

Pour obtenir le rendement électronique arrière, SCHOU a intégré cette expression sur l'hémisphère arrière et toutes les valeurs de ε_0 suffisantes pour l'éjection des électrons :

$$\boxed{\gamma_B \approx \frac{1}{4} \int_{U_s}^{\infty} \frac{\nu(\varepsilon_0, 0)}{\left| \frac{d\varepsilon_0}{dx} \right|} \left(1 - \frac{U_s}{\varepsilon_0} \right) d\varepsilon_0} \quad (1.69)$$

Cette dernière expression présente des similitudes avec celle de STERNGLASS (**formule (1.57)**). On distingue en effet les trois étapes de l'émission secondaire : la production est représentée par $\nu(\varepsilon_0, 0)$, le transport est pris en compte par le terme $|d\varepsilon_0/dx|$, et la transmission est exprimée par $(1 - U_s/\varepsilon_0)$.

Si on néglige les ionisations créées par les ions de recul (perte d'énergie nucléaire) dans le traitement de SCHOU, le rendement peut alors s'écrire de façon simple :

$$\gamma_B = \Lambda D_e \quad (1.70)$$

où D_e représente l'énergie moyenne déposée en interactions électroniques près de la surface sur une profondeur de l'ordre de grandeur de la profondeur d'échappement des électrons. Λ est un paramètre qui ne dépend que de la nature du solide. Si les électrons de cascade sont dominants dans le nombre total d'électrons, Λ est défini par :

$$\Lambda = \frac{c}{4} \int_{U_S}^{\infty} \frac{d\varepsilon_0}{4|d\varepsilon_0/dx|} \left(1 - \frac{U_S}{\varepsilon_0}\right) \quad (1.71)$$

L'énergie déposée D_e est supposée proportionnelle à la perte d'énergie électronique du projectile. La **relation (1.70)** peut donc s'écrire :

$$\gamma_B = \Lambda \beta \left| \frac{dE}{dx} \right|_e \quad (1.72)$$

β est un facteur qui permet de tenir compte de l'énergie transportée au-delà de la profondeur d'échappement des électrons par les électrons δ les plus énergétiques et éventuellement de la rétro-diffusion des projectiles. Il peut être déterminé expérimentalement à partir des rendements avant et arrière d'une cible mince :

$$\beta = \frac{1}{1 + \gamma_F/\gamma_B} \quad (1.73)$$

Si les ionisations des noyaux de recul ne sont pas négligeables, le rendement s'écrit :

$$\gamma_B = \Lambda(D_e + D_r) \quad (1.74)$$

où D_r représente la quantité d'énergie déposée par les atomes de recul près de la surface. D_r s'exprime en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire $|dE/dx|_\nu$:

$$D_r = \beta_r \left| \frac{dE}{dx} \right|_\nu \frac{\eta_\nu(\mu E)}{\mu E} \quad (1.75)$$

où $\mu = 4M_p M_c / (M_p + M_c)^2$ est le facteur de transfert maximal d'énergie, M_p et M_c étant les masses du projectile et de l'atome cible, respectivement. La conversion de l'énergie des ions de recul en énergie d'ionisation est prise en compte à travers le terme $\eta_\nu(\mu E)$ (variant faiblement avec E) et le transport de l'énergie est représenté par β_r qui dépend peu de E mais beaucoup de M_p/M_c [57].

Les quantités D_e et D_r sont obtenues à partir des équations de transport. HOLMÉN *et al.* ont proposé un traitement théorique complet de D_r [35] ainsi que des calculs approchés négligeant le paramètre β [36].

Le calcul de SCHOU permet également de donner une expression de la distribution en énergie des électrons secondaires (dans le cas où les électrons de cascade sont dominants, ce qui rend les distributions peu dépendantes de l'énergie du projectile) :

$$\frac{d\gamma_B}{d\varepsilon_1} \approx \frac{c}{4} D_e \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0^2 |d\varepsilon_0/dx|} \left(1 - \frac{U_S}{\varepsilon_0}\right) \quad (1.76)$$

Dans le cas où les ionisations primaires dominent, les expressions du rendement électronique et de la distribution en énergie des électrons sont beaucoup plus complexes. SCHOU [58] a montré que le rendement électronique devrait être proportionnel à la section efficace d'ionisation.

La supériorité du modèle de SCHOU par rapport aux modèles semi-empiriques antérieurs repose sur différents éléments :

- la production des électrons est reliée à l'énergie déposée près de la surface dans la zone du solide concernée par l'émission des électrons et non pas au pouvoir d'arrêt du solide ;
- le transport des électrons par un processus de cascade fait intervenir leur perte d'énergie électronique en remplacement de la notion assez mal définie de longueur de diffusion.

Pour des projectiles rapides ($v \geq 2v_0Z_1^{2/3}$), et en particulier pour des protons, les rendements électroniques expérimentaux sont bien reproduits, par contre l'accord est moins bon pour les distributions en énergie des électrons.

Néanmoins le domaine de validité du traitement des cascades d'ionisation n'est pas très clair. En fait la théorie des cascades n'est valable que si un grand nombre d'électrons énergétiques est produit, donc à des énergies pas trop faibles. La difficulté réside principalement dans le fait que le modèle traite séparément le cas où les cascades d'ionisation dominent et le cas où les ionisations primaires par le projectile dominent, alors que le plus souvent ces deux processus interviennent simultanément [33].

1.5 Les simulations Monte Carlo

La génération des cascades d'électrons secondaires et leur propagation dans le solide constituent l'étape du phénomène d'émission électronique secondaire la plus difficile à modéliser. Des modèles analytiques sophistiqués ont été développés pour résoudre l'équation de transport de BOLTZMANN. RÖSLER *et al.* [55] et DEVOOGHT *et al.* [19] en ont récemment publié une revue très détaillée.

Une autre approche de ces problèmes de transport est basée sur l'utilisation de simulations Monte Carlo qui apportent aussi des informations sur les distributions radiales des électrons émis et sur l'aspect statistique de l'émission électronique [19]. Cette méthode est un puissant outil d'investigation des processus physiques mis en jeu dans l'émission électronique secondaire. Le principe est de faire un échantillonnage statistique d'événements générés de façon aléatoire. Elle permet de suivre le transport d'une particule à partir de ses interactions successives avec les différents constituants du solide. On dénombre plusieurs variantes de cette méthode, dont l'énumération présente est loin d'être exhaustive :

- La simulation directe (GANACHAUD *et al.* [31], KOSHIKAWA *et al.* [40], DING *et al.* [22], et FERNÁNDEZ-VAREA *et al.* [28]) est la méthode la plus réaliste puisqu'elle traite événement par événement les processus de diffusion successifs dont les lois sont bien définies :
 - les centres diffuseurs de la cible (électrons libres et cœurs ioniques) sont disposés aléatoirement (les effets de structure cristalline ne sont pas pris en compte) ;

- la particule se déplace librement dans la cible entre deux événements successifs. Son parcours forme donc une ligne brisée, son énergie et sa direction étant modifiées localement à chaque interaction.

Une particule (projectile et électrons libérés) est suivie depuis l'entrée de la cible ou depuis son point de création jusqu'à la sortie de la cible. Le milieu étant homogène, la probabilité d'interaction est constante tout au long de la trajectoire. On arrête de suivre la particule quand elle sort de la cible ou quand son énergie devient inférieure à la barrière de surface. Dans les collisions élastiques des électrons avec les noyaux, l'énergie des électrons est conservée mais leur trajectoire change de direction. Généralement, ces diffusions élastiques sont traitées à l'aide d'un potentiel de type *Muffin-Tin* pour décrire le solide. Les collisions électron-électron prennent en compte la diffusion de l'électron incident et le recul de l'électron cible. Les collisions inélastiques avec le gaz d'électrons sont souvent calculées à l'aide de la théorie diélectrique, et les ionisations des niveaux de cœur sont traitées avec le formalisme de GRYZINSKI [32].

- L'approximation du ralentissement continu (ou *continuous slowing-down approximation*) (par ICHIMURA *et al.* [37]) constitue une simplification des calculs précédents. En effet, on ne prend en compte que les diffusions à grand angle en supposant un ralentissement continu entre deux diffusions. Ces hypothèses sont justifiées pour une particule qui subit un grand nombre de collisions à petit transfert d'énergie sans changement de direction et un petit nombre de collisions à grand angle sans perte d'énergie (collisions élastiques sur les noyaux par exemple). Le ralentissement est évalué par la formule de BETHE, les diffusions par des potentiels de type Rutherford écranté. Cette méthode est moins précise que la précédente mais permet d'accélérer considérablement les calculs.
- Le modèle des collisions multiples (AKKERMAN [2]) s'apparente au précédent. Il part de l'hypothèse qu'une collision produit une faible déflexion angulaire. Par conséquent un grand nombre de collisions peut être considéré comme une seule "*collision multiple*" regroupant les effets de plusieurs collisions individuelles. Cette méthode a été utilisée pour des électrons de grande énergie ($E \geq 10$ keV), le ralentissement des électrons étant évalué sur une longueur du trajet entre deux collisions multiples correspondant à une vingtaine de collisions individuelles. Comme avec l'approximation du ralentissement continu, les temps de calcul sont réduits mais les simulations de l'émission électronique secondaire sont dans ce cas aussi plus éloignés de la réalité que ceux de la méthode de simulation directe.

1.6 Aspect statistique de l'émission électronique secondaire

L'émission d'électrons par un solide est un processus stochastique, basé sur une série aléatoire de collisions dont la distribution des paramètres d'impacts est également aléatoire. A l'échelle atomique, il en résulte des séquences de collisions très variées qui induisent une grande dispersion du nombre d'électrons émis d'un impact de projectile à un autre. Pour être significative, toute grandeur caractéristique, comme par exemple le rendement électronique, doit donc provenir d'un

grand nombre d'événements. En revanche, ces grandeurs ne donnent aucune information sur la séquence de collisions particulière à chaque impact du projectile.

Dans les expériences d'émission électronique secondaire induite par des ions incidents, il est cependant possible de mesurer la statistique d'émission, c'est à dire la distribution des fréquences d'émission de $n = 0, 1, 2, \dots i$ électrons par projectile incident. Ces mesures sont réalisées à l'aide de dispositifs expérimentaux basés sur la collection des électrons secondaires émis dans des détecteurs qui délivrent des signaux distincts en fonction du nombre d'électrons détectés. C'est ce type de dispositif que nous avons utilisé dans nos expériences et qui est présenté dans le **chapitre 2**. Nous verrons que ce dispositif de détection des électrons, associé à la détection en coïncidence des projectiles transmis à travers une cible mince, permet d'une part de mesurer la fréquence des événements correspondant à aucun électron émis ($n = 0$) et d'autre part de distinguer des séquences particulières de collisions associées à un état de charge donné du projectile émergeant de la cible.

1.6.1 Distributions statistiques expérimentales

Les distributions statistiques du nombre d'électrons émis par une surface solide à l'impact d'un ion incident, obtenues expérimentalement, montrent souvent des déviations notables par rapport à la distribution de Poisson qu'on pourrait attendre pour un processus purement aléatoire. Les travaux de PRESCOTT (1966) [50] ainsi que ceux de DIETZ et SHEFFIELD (1973, 1975) [20] [21] sur le processus de multiplication des électrons dans les photomultiplicateurs avaient déjà montré que la distribution de PÓLYA était à même de fournir de très bons ajustements de la distribution expérimentale des électrons émis par une dynode. La distribution de PÓLYA, ou "*distribution binômiale négative*", fait partie de la famille des distributions de POISSON généralisées. Elle est le résultat de la composition d'une distribution de POISSON et d'une distribution de LAPLACE (ou Gamma)(cf. **Annexe A**) :

$$\text{Pólya}_n(\mu, b) = \frac{\mu^n}{n!} (1 + b\mu)^{-n-\frac{1}{b}} \prod_{i=1}^n (1 + (i-1)b) \quad (1.77)$$

La moyenne de cette distribution est μ ($\mu \geq 0$) et le paramètre b ($0 \leq b \leq 1$) caractérise sa déviation par rapport à la distribution de POISSON. La largeur σ d'une distribution peut-être définie par sa variance relative $\sigma = \text{variance}/(\text{moyenne})^2$. Une des caractéristiques d'une distribution de POISSON composée est que sa moyenne est égale à la moyenne de la distribution de POISSON sous-jacente, et que sa variance relative est égale à la somme des variances relatives des deux distributions qui la composent. Pour une distribution de PÓLYA, la largeur de la distribution est donnée par :

$$\sigma \equiv \frac{\text{variance}}{\text{moyenne}^2} = \frac{1}{\mu} + b \quad (1.78)$$

Il apparaît deux cas limites :

- $b = 0$: la distribution devient Poissonnienne,
- $b = 1$: la distribution devient exponentielle (distribution de FURRY).

Il est évident qu'une distribution à deux paramètres assure de meilleurs ajustements qu'une distribution à un seul paramètre comme la distribution de POISSON. La question fondamentale qui se pose alors est de savoir quelle est la signification physique du paramètre b . Quel mécanisme physique élargit la distribution des électrons émis par rapport à la distribution de POISSON ?

PRESCOTT, DIETZ et SHEFFIELD supposaient que le processus d'émission électronique est véritablement poissonnien mais que l'émission "*effective*" peut varier d'un point d'émission à un autre sur la surface. Ils évoquaient notamment l'effet des variations locales de stœchiométrie et/ou de structure à la surface, ou encore une efficacité de collection dépendant de la localisation sur la cible du point d'émission des électrons. Si l'effet de ces variations est conforme à une loi gamma, la composition des deux distributions conduit à une loi de PÓLYA. Cette interprétation justifiait tout à fait la distribution de PÓLYA. Le rendement moyen μ était bien une grandeur caractéristique du processus d'émission électronique, alors que le paramètre b représentait la variation des rendements électroniques moyennés.

Les expériences réalisées par la suite ont montré que des distributions expérimentales plus larges que la distribution de POISSON ne pouvaient pas être attribuées à des variations locales de la stœchiométrie du solide ou de l'efficacité de collection des électrons. En effet des distributions quasi-Poissonniennes ont été mesurées avec des cibles composées de plusieurs éléments, comme l'acier [64] [67], alors que des distributions obtenues à partir de cibles monoatomiques propres sont ajustées parfaitement avec des distributions de PÓLYA [8]. Par ailleurs des distributions statistiques différentes de la distribution de POISSON sont également le résultat de nombreuses simulations Monte Carlo. Enfin on peut également noter que si la plupart des distributions expérimentales sont bien reproduites par des distributions de POISSON ou des distributions de PÓLYA, il arrive que ni l'une ni l'autre de ces deux distributions ne convienne. C'est le cas, par exemple, des distributions d'électrons mesurées par LAKITS *et al.* [42] avec des ions lourds de basse énergie ($E < 16$ keV) incidents sur des cibles épaisses d'or. L'explication proposée par les auteurs repose sur des simulations Monte Carlo incluant la contribution des ions incidents rétrodiffusés et des atomes de recul de la cible [49].

Les déviations des distributions statistiques expérimentales par rapport à la distribution de POISSON ont été récemment discutées par SIGMUND [63]. Il remarque que si la statistique d'interaction d'un projectile dans un solide suit une loi de POISSON, cela ne doit en aucune façon impliquer que la distribution des électrons émis est également une loi de POISSON. En particulier, lorsque l'énergie moyenne ΔE déposée par le projectile sur la profondeur moyenne d'échappement des électrons ($\Delta E = S_e \lambda_{se}$) est beaucoup plus petite que l'énergie maximale δE_{max} qui peut être transférée à un électron dans une collision binaire, l'émission électronique secondaire est principalement déterminée par la distribution des impulsions δE . Cette distribution s'apparente à une distribution de LANDAU avec un pic étroit pour les petites valeurs de δE ($\delta E < 5$ eV) et une queue de distribution de type RUTHERFORD pour les grandes valeurs de δE , qui varie en $(\delta E)^{-2}$. Ces grandes valeurs de δE correspondent à un grand nombre d'électrons libérés ($N = \delta E/W$). Bien que la plupart des électrons libérés ne s'échappent pas de la cible, la distribution du nombre d'électrons émis reflète néanmoins la distribution interne en N^{-2} , qui est peu affectée par le transport et la barrière de surface. Ainsi avec des projectiles légers, comme les protons, on peut s'attendre à une distribution statistique plus large qu'une distribution de POISSON. La conclusion de cette réflexion de SIGMUND est qu'en réalité la question n'est pas de savoir *pourquoi une distribution expérimentale dévie d'une*

distribution de POISSON, mais pour quelle raison une distribution expérimentale coïncide parfois avec une distribution de POISSON.

1.6.2 Modèle semi-empirique de Benka

L'idée que les électrons δ de collisions binaires projectile-électron sont à l'origine de l'élargissement des distributions des électrons émis par rapport à une distribution de POISSON a été développée par BENKA [8] pour expliquer ses expériences avec des cibles métalliques épaisses (Al, Cu et Au) et des ions H^+ et He^{++} d'énergie dans le domaine du MeV. On peut noter que AZUMA *et al.* [4] [5] ont également évoqué le rôle des électrons de cascade pour expliquer les distributions des électrons émis par des cibles de carbone bombardées par des ions He, C et O d'énergie plus élevée ($E = 1$ MeV/u).

Quand un projectile pénètre dans un solide, il dépose une partie de son énergie dans la profondeur moyenne d'échappement des électrons par des transferts successifs d'énergie δE aux électrons du solide. Si on suppose que l'on peut schématiser ce processus en le découpant N tranches de temps identiques d'une durée Δt durant lesquelles la probabilité d'excitation d'un électron p_p est constante, alors la probabilité P_n d'excitation de n électrons pendant les N tranches de temps est donnée par une distribution binômiale qui se réduit de fait à une distribution de POISSON car $N \rightarrow \infty$ et $p_p \rightarrow 0$. On peut étendre ce modèle en notant que si n est le nombre d'électrons émis par la surface, p_p est alors la probabilité pour que les électrons excités à une profondeur donnée arrivent à la surface et la traversent.

Les lois expérimentales mesurées étant différentes d'une loi poissonnienne sont une indication qu'un autre processus entre en jeu concernant l'émission secondaire, que BENKA suppose être le phénomène de cascades, décrit comme suit : si chaque électron excité a une probabilité moyenne constante p_e d'exciter un autre électron durant le temps Δt , alors la probabilité totale p_i pour que le i -ème électron soit libéré est alors :

$$p_i = p_p + (i - 1)p_e \quad (1.79)$$

à condition que $p_p \ll 1$ et que $p_e \ll 1$. On aura alors $p_i \ll 1$, et la probabilité totale d'excitation de n électrons s'écrira :

$$P_n \propto \binom{N}{n} \prod_{i=1}^n p_i \quad (1.80)$$

à la limite $N \rightarrow \infty$ et $p_i \rightarrow 0$ l'équation (1.80) est équivalente à une loi de PÓLYA $Pólya_n(\mu, b)$ de paramètre b :

$$b = \frac{p_e}{p_p} \quad (1.81)$$

et de moyenne μ :

$$\mu = \frac{Np_p}{1 - Np_e} \approx n_p + n_p n_e \quad (1.82)$$

où n_p et n_e sont le nombre moyen d'électrons produits par le projectile et par un électron de première génération, respectivement. L'expression (1.82) n'est valable que dans le cas $n_e \ll 1$, ce qui est cohérent avec les conditions de validité de l'équation (1.79).

La probabilité de transmission à travers la surface peut être introduite dans une redéfinition des probabilités p_p et p_e , ce qui permet par la suite d'identifier μ au rendement γ , qui correspond, d'après l'équation (1.82) à une somme de contributions directe (produite par l'ion incident) et indirecte (produite par les électrons de première génération). Selon l'équation (1.81) le paramètre b de PÓLYA constitue une mesure de l'intensité du processus de cascade.

A partir de ses résultats expérimentaux, BENKA a proposé une modèle semi-empirique conduisant à une estimation quantitative du paramètre b de la distribution de PÓLYA. Ce modèle repose sur les hypothèses simplificatrices suivantes :

1. la distribution en énergie des électrons à l'intérieur du solide est remplacée par la notion d'énergie moyenne $\bar{\epsilon}$ commune à tous les électrons. En conséquence, la probabilité p_e est constante et les relations (1.80) à (1.82) peuvent s'appliquer ;
2. les variations de la perte d'énergie du projectile en excitations électroniques sur la profondeur d'échappement des électrons sont négligées, donc les probabilités p_p et p_e sont constantes ;
3. la distribution des transferts d'énergie δE d'un projectile (ion ou électron) à un électron s'écrit :

$$f(\delta E) = \frac{\pi}{\delta E^2} \frac{Z_p^2 e^2 M_p}{m E_p} \quad (1.83)$$

où $Z_p e$, M_p et E_p sont la charge, la masse et l'énergie du projectile et m la masse de l'électron au repos. L'intégration de la quantité $-\delta E f(\delta E)$ pour des valeurs de δE comprises entre l'énergie moyenne d'ionisation I du solide (I est l'énergie minimale nécessaire à l'ionisation d'un électron de la cible [1], E_{min}) et l'énergie maximale transférée à un électron dans une collision frontale (E_{max}) représente la contribution des collisions proches au pouvoir d'arrêt de BETHE ;

4. les probabilités de sortie des électrons excités directement et indirectement sont supposées identiques, en raison de la diffusion des électrons dans le solide. En conséquence, elles s'éliminent dans l'expression du paramètre b de la relation (1.81) où elles interviennent au numérateur et au dénominateur, et il n'est pas nécessaire de connaître leur valeur pour le calcul de b .

L'étape suivante du calcul consiste à supposer que les probabilités de production des électrons p_e et p_p sont proportionnelles à l'intégrale de $f(\delta E)$ (équation (1.83)) entre E_{min} et E_{max} . En injectant les résultats de ces intégrations dans la relation (1.81), on obtient, dans l'hypothèse où $E_{min} \ll E_{max}$, l'expression suivante de b :

$$b \simeq \frac{E_p}{\bar{\epsilon}} \frac{m}{M_p Z_p^2} \quad (1.84)$$

Ici, M_p et E_p sont la masse et l'énergie de l'ion incident, $Z_p e$ est sa charge effective [1], et $\bar{\epsilon}$ l'énergie cinétique moyenne des électrons excités dans la cible. A partir de cette expression du paramètre b et de l'ensemble des valeurs déduites des distributions d'électrons mesurées pour les ions H^+ et He^{++} entre 0.5 et 4.8 MeV incidents sur diverses cibles métalliques, BENKA constate que l'énergie moyenne des électrons dans la cible dépend faiblement des caractéristiques du projectile (énergie,

masse, charge) dans le domaine étudié. Cela signifie que pratiquement toute l'information concernant le projectile incident est perdue durant le processus de cascade. Cette constatation peut être reliée au modèle semi-empirique de STERNGLASS [65] dans lequel le paramètre de proportionnalité Λ entre le rendement électronique γ et la perte d'énergie varie très peu pour différentes combinaisons ion-cible. Les processus de diffusion et de cascade à l'intérieur du solide effacent les caractéristiques de l'interaction initiale projectile-électron, si bien que le rendement d'émission γ dépend essentiellement de la quantité d'énergie déposée sur la profondeur moyenne d'échappement des électrons.

La comparaison des valeurs expérimentales du paramètre b et des valeurs calculées par la **relation (1.84)** nécessite de connaître la valeur de l'énergie moyenne $\bar{\varepsilon}$ des électrons dans le solide. BENKA en donne une estimation quantitative en écrivant que le nombre moyen d'électrons de cascade excités par un électron d'énergie $\bar{\varepsilon}$ peut s'écrire de la façon suivante :

$$\nu \approx \frac{\bar{\varepsilon}}{I} \approx \frac{R(\varepsilon)}{\lambda(\varepsilon)} \quad (1.85)$$

où I est le potentiel moyen d'ionisation d'un atome cible, $R(\varepsilon)$ le parcours d'un électron d'énergie ε dans le solide et $\lambda(\varepsilon)$ son libre parcours moyen inélastique. Le libre parcours moyen inélastique $\lambda(\varepsilon)$ étant difficile à évaluer précisément, il est remplacé par une valeur moyennée $\bar{\lambda}$. Le parcours d'un électron peut être calculé à l'aide de l'expression suivante [27] :

$$R(\bar{\varepsilon}) = \frac{K}{\rho} \bar{\varepsilon}^{1.68} \quad (1.86)$$

où R est en Å, la densité ρ du solide en g/cm³, $\bar{\varepsilon}$ en eV et $K = 5.8 \cdot 10^{-3}$. A partir des **relations (1.85)** et **(1.86)**, on obtient finalement :

$$\bar{\varepsilon} \approx \left(\frac{\bar{\lambda}\rho}{KI} \right)^{1.47} \quad (1.87)$$

En utilisant les potentiels moyen d'ionisation I donnés dans la **référence [1]**, l'ajustement des paramètres b expérimentaux par la **relation (1.84)** est obtenu pour un libre parcours moyen de 19 Å, conduisant à des valeurs de l'énergie moyenne des électrons de 350 eV dans l'aluminium, 780 eV dans le cuivre et 655 eV dans l'or. Cette valeur de 19 Å obtenue pour le libre parcours moyen des électrons n'est pas irréaliste, mais il convient de remarquer, à l'instar des auteurs, qu'elle ne constitue pas une preuve de la validité de toutes les hypothèses de ce modèle semi-empirique.

En particulier l'**expression (1.87)** de l'énergie moyenne des électrons est une approximation valable seulement pour des énergies élevées ($\bar{\varepsilon} > 1$ keV). Par ailleurs le modèle impose que cette énergie moyenne soit supérieure au potentiel d'ionisation I de l'atome cible, il est donc peu utilisable pour des cibles de Z élevé ($I \sim 500$ eV pour $Z > \sim 60$). L'introduction d'un libre parcours moyen $\bar{\lambda}$ constant est également discutable car en réalité le libre parcours moyen dépend du spectre en énergie des électrons. Bien que ce modèle conduise à des estimations quantitatives très imprécises, il a toutefois le mérite d'introduire d'une manière assez réaliste les processus dominants responsables des distributions statistiques de l'émission électronique. Mais évidemment il ne peut en aucun cas prétendre à remplacer l'analyse des distributions statistiques que l'on peut obtenir par des simulations Monte Carlo par exemple.

Bibliographie

- [1] S.P. AHLEN,
Rev. Mod. Phys., **52**(1980)121.
- [2] A.F. AKKERMAN, A.L. GIBREKHTERMANN,
Nucl. Instr. Meth. B, **6**(1985)496.
- [3] N.R. ARISTA,
Phys. Rev. B, **18**(1978)1.
- [4] T. AZUMA, Y. YAMAZAKI, K. KOMAKI, M. SEKIGUCHI, T. HASEGAWA, T. HATTORI,
K. KUROKI,
Nucl. Instr. Meth. B, **67**(1992)636.
- [5] T. AZUMA, Y. YAMAZAKI, K. KOMAKI, M. SEKIGUCHI, T. HASEGAWA, T. HATTORI,
K. KUROKI,
“*Ionisation of Solids by Heavy Particles*” —Ed. R. BARAGIOLA, NATO ASI series,
Vol. **306**, Plenum, New-York (1993).
- [6] R.A. BARAGIOLA, E.V. ALONSO, J. FERRON, A. OLIVA-FLORIO,
Surface Sci., **90**(1979)240.
- [7] R.A. BARAGIOLA,
Nucl. Instr. Meth B, **78**(1993)223.
- [8] O. BENKA, E. STEINBAUER, O. BOLIK, T. FINK,
Nucl. Instr. Meth. B, **93**(1994)156.
- [9] H.A. BETHE,
Ann. Phys., **5**(1930)325.
- [10] H.A. BETHE,
Handbuch der Physik, **24**(1935)273.
- [11] H.A. BETHE,
Phys. Rev., **59**(1941)940.

- [12] R.J. BEUHLER,
J. Appl. Phys., **54**(1983)4118.
- [13] A. BILLEBAUD,
Thèse de doctorat, Université CLAUDE BERNARD LYON I (1995).
- [14] N. BOHR,
Mat. Fys. Medd., **18**(1948)8.
- [15] W. BRANDT, A. RATKOWSKI, R.H. RITCHIE,
Phys. Rev. Lett., **33**(1974)1325.
- [16] W. BRANDT, R.H. RITCHIE,
Nucl. Instr. Meth., **132**(1976)43.
- [17] G. CARTER, J.S. COLLIGON,
"Ion Bombardment of Solids" —Heinemann Educational Books Ltd., London (1968).
- [18] W.K. CHU,
"Material Characterization Using Ion Beam" —Ed. J.P. THOMAS et A. CACHARD, Nato Advanced Study Institutes Series, Série B: Physics, Vol. **28**, Plenum Press, New-York (1978).
- [19] J. DEVOOGHT, J.C. DEHAES, A. DUBUS, M. CAILLER, J.P. GANACHAUD,
"Particle Induced Emission I" —Springer Tracts in Modern Physics, Vol. **122**, Springer-Verlag (1991).
- [20] L.A. DIETZ, J.C. SHEFFIELD,
Rev. Sci. Instr., **44**(1973)183.
- [21] L.A. DIETZ, J.C. SHEFFIELD,
J. Appl. Phys., **46**(1975)4361.
- [22] Z.J. DING, R. SHIMIZU,
Surf. Sci., **197**(1988)539.
- [23] A. DUBUS, J. DEVOOGHT, J.C. DEHAES,
Nucl. Instr. Meth. B, **13**(1986)623.
- [24] A. DUBUS, J. DEVOOGHT, J.C. DEHAES,
Theory. Phys. Rev. B, **36**(1987)5093.
- [25] A. DUBUS, J. DEVOOGHT, J.C. DEHAES,
Theory. Phys. Rev. B, **36**(1987)5110.
- [26] J.C. ECKARDT, G. LAUTSCHNER, N.R. ARISTA, R.A. BARAGIOLA,
J. Phys. C, **11**(1978)L851.
- [27] L.C. FELDMAN, J.W. MAYER,
"Fundamentals of Surface and Thin Film Analysis" —North Holland, New-York (1986).

- [28] J.M. FERNÁNDEZ-VAREA, D. LILJEQUIST, S. CSILLAG, R. RÄTY, F. SALVAT,
Nucl. Inst. Meth. B, **108**(1996)35.
- [29] O.B. FIRSOV,
Sov. Phys. JETP C, **9**(1959)1076.
- [30] M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX, M. AUZAS,
Phys. Rev. A, **16**(1977)2323.
- [31] J.P. GANACHAUD, M. CAILLER,
Surf. Sci., **83**(1979)498.
- [32] M. GRYZINSKI,
Phys. Rev. A, **138**(1965)305.
- [33] D. HASSELKAMP,
“*Particle Induced Emission II*” —Springer Tracts in Modern Physics, Vol. **123**, Springer-Verlag (1991).
- [34] W.O. HOFER,
Scanning Microscopy Suppl., **4**(1990)265.
- [35] G. HOLMÉN, B. SVENSSON, J. SCHOU, P. SIGMUND,
Phys. Rev. B, **20**(1979)2247.
- [36] G. HOLMÉN, B. SVENSSON, A. BURÉN,
Nucl. Inst. Meth., **185**(1981)523.
- [37] S. ICHIMURA, R. SHIMIZU,
Surf. Sci., **112**(1981)386.
- [38] T. KANEKO,
Phys. Rev. A, **43**(1991)4780.
- [39] P. KOSCHAR, K. KRONEBERGER, A. CLOUVAS, M. BUCKHARD, W. MECKBACH,
O. HEIL, J. KEMMLER, H. ROTHARD, K.O. GRØNEVELD, R. SCHRAMM, H.D. BETZ,
Phys. Rev. A, **40**(1989)3632.
- [40] T. KOSHIKAWA, R. SHIMIZU,
J. of Phys., **D7**(1974)1303.
- [41] R. LAUBERT,
IEEE Trans. Nucl. Sci., **NS-26**(1979)1020.
- [42] G. LAKITS, F. AUMAYR, H. WINTER,
Phys. Lett. A, **139**(1989)395.
- [43] J. LINDHARD, M. SCHARFF,
Phys. Rev., **124**(1961)128.


- [44] J. LINDHARD, M. SCHARFF, H.E. SCHIOTT,
Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., **33**(1963)14.
- [45] J. LINDHARD, A. WINTHER,
Mat.-Fys. Med., **34**(1964)4.
- [46] G. MOLIÈRE,
Z. Naturforsch., **3a**(1948)78.
- [47] MURPHY's law,
see "*The Scientist Speculates: an Anthology of Partly Baked Ideas*" —I.J. GOOD Ed.,
p. 212, (N.Y. Putnam 1965).
- [48] H. OGAWA, N. SAKAMOTO, I. KATAYAMA, Y. HARUYAMA, M. SAITO, K. YOSHIDA,
M. TOSAKI, Y. SUZUKI, K. KIMURA,
Phys. Rev. A, **54**(1996)5027.
- [49] K. OHYA, F. AUMAYR, H. WINTER,
Phys. Rev. B, **46**(1992)3101.
- [50] J.R. PRESCOTT,
Nucl. Instr. Meth., **39**(1966)173.
- [51] E. RAY, R. KIRSCH, H.H. MIKKELSEN, J.C. POIZAT, J. REMILLIEUX,
Nucl. Instr. Meth. B, **69**(1992)133.
- [52] M. RÖSLER, W. BRAUER,
Phys. Stat. Sol., **126**(1984)629.
- [53] M. RÖSLER, W. BRAUER,
Phys. Stat. Sol., **148**(1988)213.
- [54] M. RÖSLER, W. BRAUER,
Phys. Stat. Sol., **156**(1989)K85.
- [55] M. RÖSLER, W. BRAUER,
"*Particle Induced Electron Emission I*" —Springer Tracts in Modern Physics, Vol. **122**,
Springer-Verlag (1991).
- [56] H. ROTHARD, K. KRONEBERGER, A. CLOUVAS, E. VEJE, P. LORENZEN, N. KELLER,
J. KEMMLER, W. MECKBACH, K.O. GRØNEVELD,
Phys. Rev. A, **41**(1990)2521.
- [57] J. SCHOU,
Phys. Rev. B, **22**(1980)2141.
- [58] J. SCHOU,
Scanning Microscopy B, **2**(1988)607.

- [59] H. SEILER,
Z. Angew. Phys., **22**(1967)249.
- [60] P. SIGMUND, K.B. WINTERBON,
Nucl. Inst. Meth., **119**(1974)541.
- [61] P. SIGMUND, S. TOUGAARD,
“*Inelastic Particle-Surface Collisions*” —Ed. E. TAGLAUER et W. HEILAND, Springer-Verlag, Berlin (1981) p. 2.
- [62] P. SIGMUND,
“*Sputtering by Particle Bombardment I*” —Ed. R. BEHRISCH, Springer-Verlag (1981).
- [63] P. SIGMUND,
“*Ionisation of Solids by Heavy Particles*” —Ed. R. BARAGIOLA, NATO ASI series, Vol. **306**, Plenum, New-York, (1993) p. 59.
- [64] G. STAUDENMAIER, W.O. HOFER, H. LIEBL,
Int. J. Mass Spectr. Ion Phys., **21**(1976)103.
- [65] E.J. STERNGLASS,
Phys. Rev., **108**(1957)1.
- [66] J.W. TAPE, W.M. GIBSON, J. REMILLIEUX, R. LAUBERT, H.E. WEGNER,
Phys. Rev. Lett., **33**(1974)1325.
- [67] F. THUM, W.O. HOFER,
Surf. Sci., **90**(1979)331.
- [68] S. TOUGAARD, P. SIGMUND,
Phys. Rev. B, **25**(1982)4452.
- [69] M. VANA, F. AUMAYR, C. LEMELL, H.P. WINTER,
Int. J. Mass Spectr. Ion Proc., **149/150**(1995)45.
- [70] P. VARGA, H. WINTER,
“*Particle Induced Electron Emission II*” —Springer Tracts in Modern Physics, Vol. **123**, Springer-Verlag (1991).

Dispositif expérimental et analyse des données

2.

2.1 Introduction

 NOTRE DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL répond à la nécessité de pouvoir déterminer les contributions individuelles de chacun des composants des projectiles composites que nous avons utilisés. La mesure de la statistique de l'émission électronique nous permet notamment de connaître les probabilités d'émission de $0, 1, 2, \dots, n$ électrons et de déterminer le rendement électronique ou nombre moyen d'électrons émis par projectile incident. Il existe des dispositifs permettant de mesurer seulement les rendements électroniques avant et arrière utilisant des cages de Faraday placées en regard des deux faces d'une cible mince. L'utilisation de ces dispositifs basés sur des mesures de courant est cependant limitée à des faisceaux relativement intenses (de l'ordre du nanoampère) qui ont pour conséquence un risque d'endommagement des solides, surtout avec des cibles minces. De plus, les études avec des projectiles neutres sont exclues.

Les dispositifs permettant de mesurer la statistique de l'émission électronique secondaire connaissent actuellement un regain d'intérêt, mais il est à noter que la plupart sont employés pour l'étude de l'émission électronique arrière de cibles métalliques épaisses. L'utilisation de ce genre de dispositif pour mesurer événement par événement la statistique de l'émission électronique des deux faces d'une cible mince en coïncidence avec le projectile émergent est pour nous d'un intérêt primordial. Cette méthode permet d'éviter la détection des électrons dûs à l'émission spontanée sous l'influence du champ électrique de collection et d'accroître ainsi la fiabilité de nos mesures. Elle nous autorise aussi à sélectionner un effet physique à étudier, en limitant la détection des électrons à l'émission associée à un état de charge donné du projectile émergent. De plus, elle permet de compter les événements où aucun électron n'est émis par la cible.

Dans ce chapitre, nous décrirons le dispositif expérimental installé auprès du VAN DE GRAAFF 2.5 MV de l'IPNL et déjà utilisé par A. BILLEBAUD [4, chap. 3], puis nous présenterons la méthode de dépouillement des spectres expérimentaux qui donne la distribution des probabilités d'émission et le rendement électronique.

2.2 Le dispositif expérimental

2.2.1 Contraintes liées à la mesure

Notre but est de mesurer les distributions $\{W_n\}_n$ des probabilités d'émission de n électrons (où $n = 0, 1, \dots$) lors du passage d'un ion dans un solide. Les deux problèmes majeurs sont d'une part la collection des électrons, qui doit être complète et reproductible, d'autre part une bonne discrimination des signaux détectés afin de bien résoudre les multiplicités électroniques.

Le premier problème peut être résolu à l'aide d'un champ électrique appliqué entre la cible et les détecteurs d'électrons. La contrainte de linéarité imposée pour une résolution des signaux optimale nous interdit d'employer des channeltrons, ceux-ci fonctionnant en régime de saturation. Si l'utilisation en régime proportionnel de ce type de détecteur est théoriquement possible, certains auteurs ont par contre étudié la possibilité d'utiliser des galettes de microcanaux [6] [2] mais les amplitudes des signaux ne sont résolues que pour cinq électrons au plus [9] [10] [12]. Les meilleurs résultats pour les mesures de statistique ont été obtenus avec des détecteurs silicium [5] [11]. L'amplitude des signaux délivrés est proportionnelle à l'énergie déposée dans le silicium par les électrons incidents. Les électrons sont donc accélérés au moyen d'un champ électrique à une énergie choisie généralement entre 15 et 40 keV. L'énergie totale alors déposée dans le silicium est caractéristique du nombre n d'électrons détectés. C'est ce type de détecteur que nous avons utilisé dans nos expériences.

2.2.2 Description du dispositif expérimental

Un schéma d'ensemble du dispositif expérimental est montré sur la **figure 2.1**. La géométrie de détection des électrons s'inspire de celle utilisée par YAMAZAKI *et al.* [17]. L'originalité du système réside dans l'inclinaison à 45° de l'ensemble détecteurs-cible par rapport à la direction du faisceau incident, comme le montre la **figure 2.1**. L'intérêt de ce montage est qu'il permet de détecter simultanément les électrons secondaires émis par les deux faces d'une cible mince lorsqu'elle est traversée par le faisceau incident, cette détection pouvant être réalisée en coïncidence avec celle des projectiles transmis à travers la cible. La collection des électrons secondaires se fait en portant la cible à une tension V_0 ($V_0 = -20$ kV) les détecteurs étant reliés à la masse. La configuration des surfaces polarisées et des distances détecteurs-cible est optimisée pour une collection maximale des électrons comme le montre la **figure 2.2**. Le champ s'applique entre deux surfaces de 40×40 mm² distantes de 25 mm, les surfaces de détection de 7 mm de diamètre étant définies par des caches en acier pour éviter au maximum la collection d'électrons parasites. La contribution des électrons d'énergie inférieure à 10 eV étant très largement majoritaire (des distributions en énergie d'électrons émis sont montrées à titre d'exemple dans la **figure 2.3**) on peut considérer que notre système de détection fonctionne de façon satisfaisante. En effet, même si la collection des électrons issus des collisions binaires avec le projectile incident, qui sont très énergétiques mais peu nombreux, peut être incomplète, la collection des électrons d'énergie inférieure à 100 eV est en revanche parfaite.

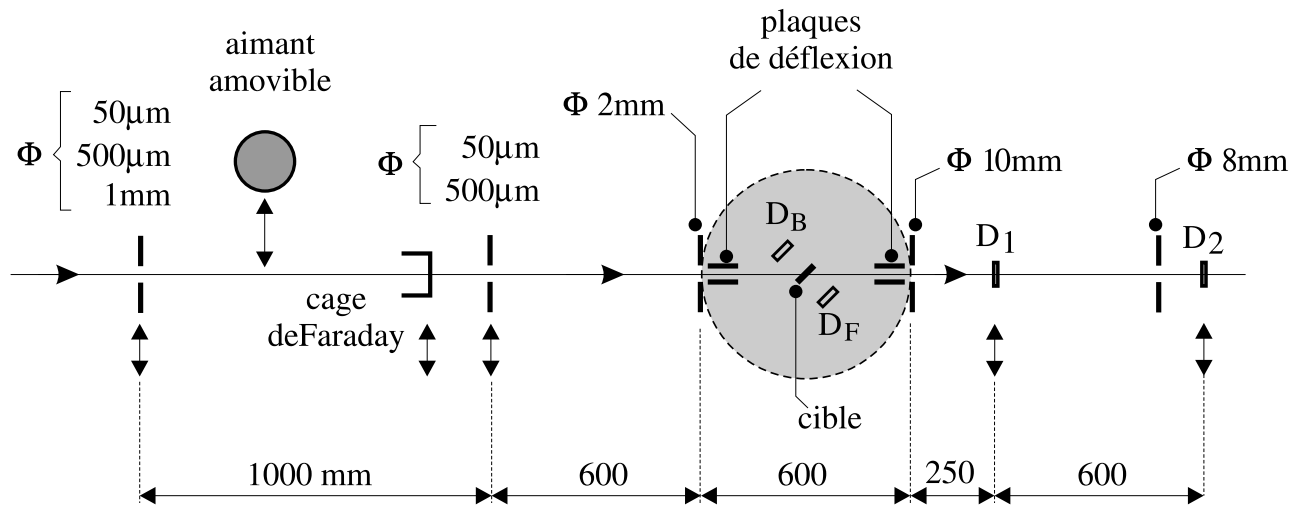


Figure 2.1 : Schéma de principe du dispositif expérimental.

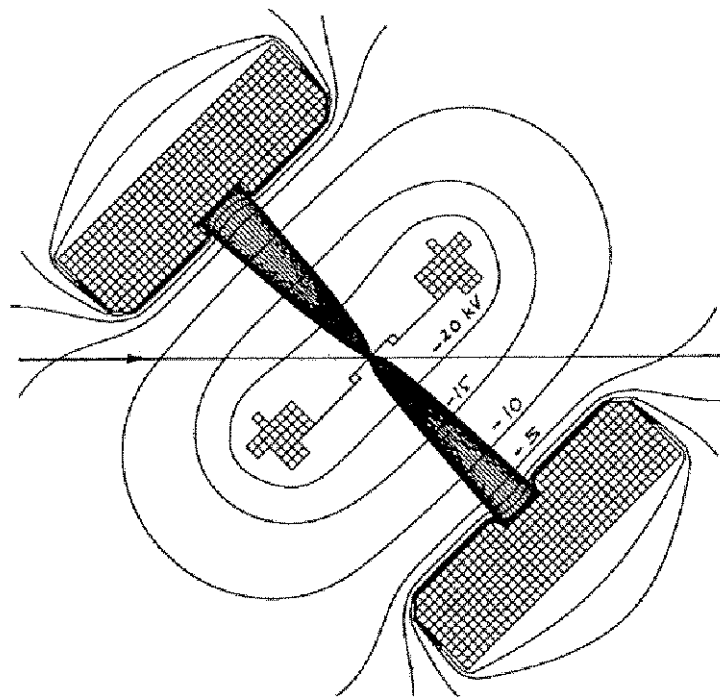


Figure 2.2 : Simulation des équipotentielles autour du système de détection et de la cible (polarisée à -20 kV) ainsi que des trajectoires d'électrons de 100 eV émis tous les 10° [4].

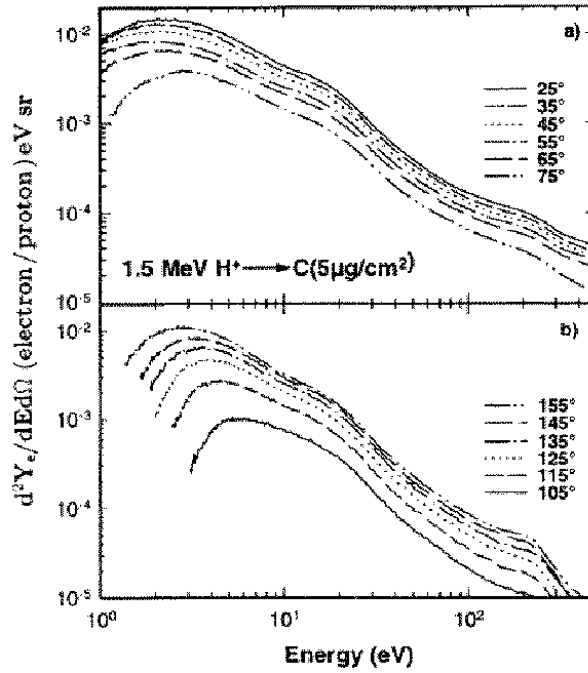


Figure 2.3 : Distributions en énergie des électrons secondaires émis par une cible mince de carbone de $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ à l'impact de protons de 1.5 MeV pour différents angles d'émission par rapport à la direction du faisceau (a) émission avant, et (b) émission arrière [7].

On peut noter que le plus souvent les mesures de la statistique de l'émission électronique secondaire des solides sont réalisées avec des cibles à la masse et que c'est le détecteur semi-conducteur et l'électronique d'amplification des signaux qui sont portés à une tension positive de quelques dizaines de kilovolts [11] [3]. Cette dernière configuration permet également de réaliser des mesures d'émission électronique avec des cibles gazeuses pour l'étude des collisions ions-molécules, ions agrégats [13].

Les cibles

Les cibles sont centrées parallèlement aux détecteurs, et disposées sur un porte-cible en dural ne comportant aucune arête vive afin de limiter le phénomène d'émission froide. Au cours de nos expériences, le bruit de fond a pu être abaissé à moins de 10 électrons par seconde. Ce porte-cible est lui-même monté sur un manipulateur (x, y, z, θ) permettant ainsi de changer de cible en cours d'expérience. Le choix du carbone pour les cibles est motivé par plusieurs raisons, la première étant sa bonne tenue mécanique permettant la réalisation de feuilles très minces (de l'ordre de 100 \AA). En second lieu ce matériau n'est pas sensible à l'oxydation et l'adsorption de molécules du vide résiduel modifie peu la composition chimique de surface. Elles peuvent donc être utilisées dans un vide conventionnel de l'ordre de 10^{-7} mbar , ce qui n'est pas le cas des cibles métalliques qui nécessitent d'avoir recours à des équipements en Ultra-Vide avec techniques de décapage *in situ*.

Dans nos expériences, nous avons utilisé des cibles réalisées à partir de feuilles minces de carbone obtenues par évaporation sous vide. Elles présentent une structure amorphe, leur masse volumique

est de $1.65 \pm 0.15 \text{ g/cm}^3$ [8]. Leurs épaisseurs ont été déterminées par la mesure de la perte d'énergie de particules α pour lesquelles les valeurs du pouvoir d'arrêt sont connues avec précision [18]. Nous avons utilisé deux cibles minces d'épaisseur moyenne $2.40 \pm 0.25 \mu\text{g/cm}^2$ et une autre plus épaisse de $19.4 \pm 2.0 \mu\text{g/cm}^2$. L'inclinaison à 45° par rapport au faisceau implique que les épaisseurs traversées par les projectiles incidents seront respectivement de 3.4 et $27.4 \mu\text{g/cm}^2$, soit environ 205 et 1660 Å.

Les plaques correctrices

Le champ de polarisation de la cible engendre une déviation des faisceaux d'ions incidents et émergents conduisant à une perte d'ions émergents dans le détecteur de coïncidence. Cela déplace aussi le point d'impact du faisceau par rapport au centre de la cible et peut modifier en conséquence la géométrie de collection des électrons. Pour remédier à cela, deux plaques parallèles en amont du porte-cible sont polarisées de façon à ramener le point d'impact des ions au centre de la cible. Un système similaire de plaques électrostatiques situé en aval de la cible permet de corriger les trajectoires des ions à la sortie de la cible. On peut ainsi soit optimiser le nombre d'ions dans le détecteur de coïncidence, soit à l'inverse défléchir les trajectoires des ions transmis afin de ne conserver que les neutres dans le faisceau détecté.

Les détecteurs

Nos détecteurs sont des détecteurs silicium de type PIPS (*Passivated Implanted Planar Silicon*), fonctionnant comme des jonctions p-n. La surface d'entrée est dopée p^+ en atomes de bore sur quelques centaines d'ångströms, tandis que la face arrière est dopée n^+ par des atomes d'arsenic. Sur chaque face du détecteur se trouvent des contacts en aluminium (annulaire sur la face d'entrée). La surface d'entrée est passivée par une couche de SiO_2 d'environ 60 Å. L'épaisseur de la zone déplétée ou zone "utile" du détecteur est fonction de la tension de polarisation appliquée. La couche morte du détecteur ($\text{SiO}_2 + \text{zone } p^+$) a une épaisseur comprise entre 500 et 600 Å. Il est important que l'épaisseur de la couche morte soit minimale pour que les électrons perdent un minimum d'énergie entre l'entrée du détecteur et leur arrivée en zone déplétée, et que la résolution du détecteur soit la plus faible possible pour une bonne discrimination des signaux.

Nos détecteurs d'électrons sont des PIPS Canberra avec les caractéristiques suivantes :

- surface d'entrée de 100 mm^2 , soit un diamètre de 14 mm,
- courant de fuite des détecteurs : 6 nA,
- largeur des zones déplétées : $300 \mu\text{m}$,
- résolution des détecteurs : 12 keV (α de 5 MeV), et 4.2 keV (électrons de 20 keV).

La détection des projectiles après la traversée de la cible se fait également avec des détecteurs silicium de type PIPS. Deux détecteurs sont placés sur la voie de faisceau en aval de la chambre d'expérience à des distances de la cible différentes (55 et 115 cm). Le choix de l'un ou l'autre de

ces détecteurs pour délivrer le signal de coïncidence se fera selon l'angle d'acceptance souhaité pour la détection des projectiles transmis. En particulier, le détecteur le plus éloigné de la cible a été utilisé pour les mesures en coïncidence avec les projectiles neutres émergents, les trajectoires des ions émergents étant défléchies à l'aide de plaques électrostatiques situées en aval de la cible. Le détecteur le plus proche de la cible a par contre été utilisé quand le faisceau émergent présentait une grande dispersion angulaire comme par exemple le faisceau constitué par tous les fragments des ions moléculaires après traversée d'une cible épaisse.

2.2.3 L'électronique associée

Un schéma général de l'électronique d'acquisition est présenté sur la **figure 2.4**.

Les voies électron

Nos mesures reposant sur l'analyse des distributions d'amplitudes des signaux des détecteurs, une chaîne de mesure de spectroscopie classique est associée à chaque détecteur.

Les détecteurs d'électrons sont connectés à des préamplificateurs Canberra 2003 qui fournissent une tension de sortie proportionnelle aux charges accumulées dans la capacité du circuit intégrateur. Ces signaux sont ensuite pris en charge par des amplificateurs de spectroscopie. La voie arrière dispose d'un amplificateur Canberra 2010, et la voie avant d'un amplificateur Tennelec 205. Le temps de mise en forme des impulsions sur chacune des deux voies est de $1\ \mu\text{s}$. Les impulsions mises en forme sont ensuite envoyées dans un convertisseur analogique-digital (ADC) ORTEC AD811 comportant 8 voies.

Un niveau continu de 50 mV est imposé aux signaux de sortie des amplificateurs des voies électrons. Ainsi toutes les impulsions sont rehaussées de cette valeur constante de 50 mV, y compris les impulsions de bruit. Ceci permet que tout projectile n'ayant pas produit d'émission d'électron déclenche une coïncidence sur un signal d'amplitude au moins égale à 50 mV. Ces impulsions d'amplitude minimale constitueront après codage le "*pic zéro*" des spectres d'électrons. Lors du dépouillement des spectres, la surface de ce pic donnera la probabilité W_0 pour qu'aucun électron secondaire ne soit émis à l'impact d'un projectile.

La résolution expérimentale de l'ensemble détecteur + chaîne d'acquisition est déterminée à partir de l'ajustement des spectres. En pratique nous avons mesuré une résolution de $5.5 \pm 0.5\ \text{keV}$ pour chacune des voies. L'erreur est en fait fonction des fluctuations du bruit électromagnétique ambiant et de celui de la ligne de masse, nous y reviendrons plus tard.

Les coïncidences

L'objectif de nos expériences étant de détecter en coïncidence les électrons émis par la cible et le projectile incident, il est nécessaire de coder les signaux correspondant aux électrons si, et seulement

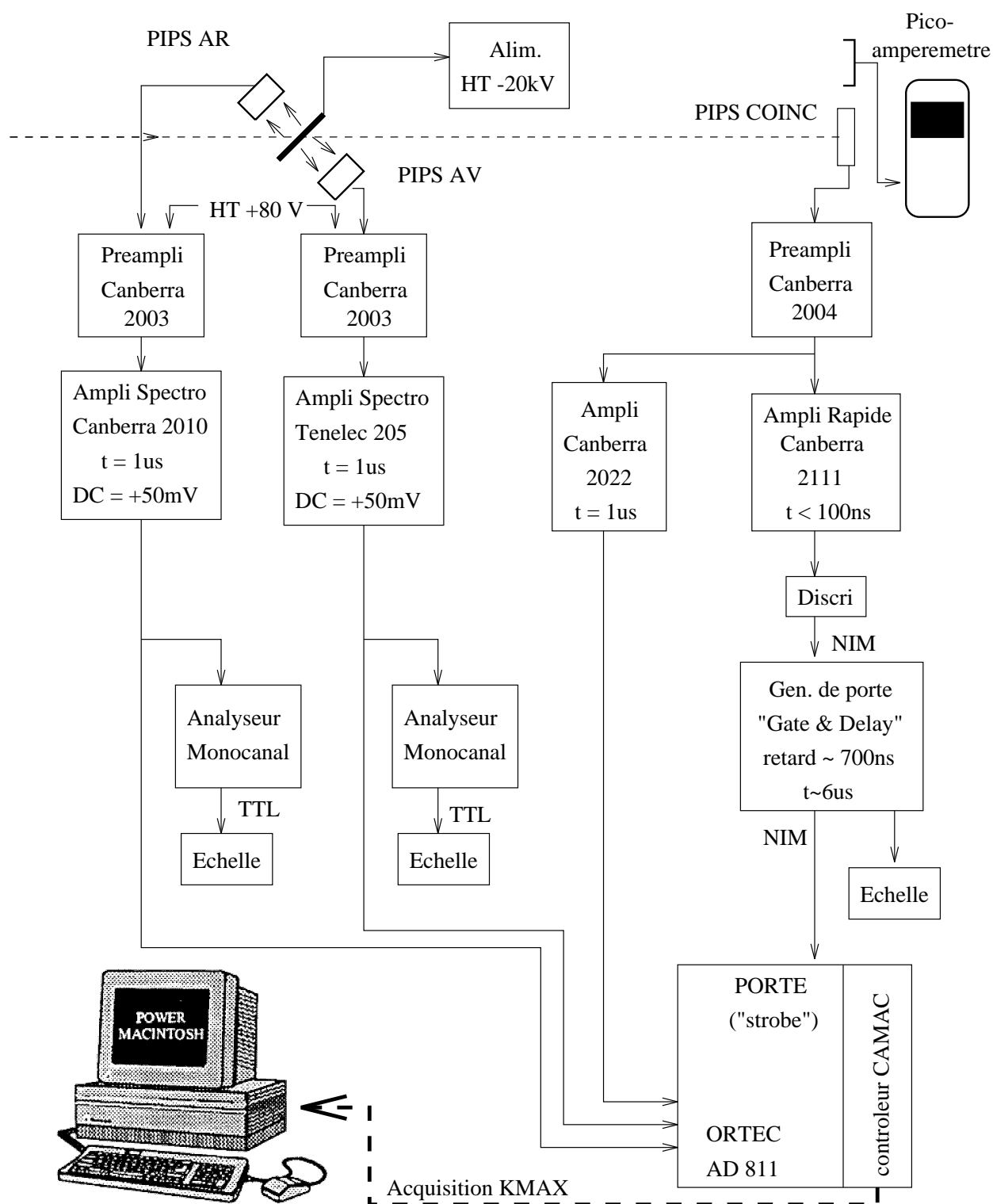


Figure 2.4 : *Electronique d'acquisition.*

si un projectile est détecté simultanément.

Il est donc nécessaire que les signaux du détecteur de projectile soient traités par une chaîne électronique rapide. En sortie du préamplificateur, ces signaux entrent d'une part dans un amplificateur de spectroscopie dont la sortie est directement connectée à une voie d'entrée de l'ADC et d'autre part dans un amplificateur rapide dont le temps de mise en forme des impulsions est de quelques dizaines de nanosecondes. Le signal de sortie de l'amplificateur rapide est envoyé dans un discriminateur qui permet de sélectionner éventuellement l'amplitude des signaux de coïncidence. Son signal de sortie (au standard NIM) sert à déclencher un générateur de porte qui fournit le signal de coïncidence pour le déclenchement de l'ADC. La durée de la porte de coïncidence a été choisie de $4\ \mu\text{s}$, durée nécessaire au codage des signaux des détecteurs d'électrons et du détecteur de projectile provenant d'amplificateurs de spectroscopie plus lents.

L'ADC fonctionne en mode "*Follow Mode & Peak Sensing*", ce qui signifie que pendant la durée de la porte, seul le pic de plus grande amplitude est codé. Nous reparlerons plus loin de ce mode de fonctionnement dans le cas d'impulsions de faibles amplitudes, et en particulier de ses conséquences sur la forme du pic zéro correspondant au codage des impulsions de bruit.

Durant la phase de conversion, l'ADC fonctionne en chargeant une capacité à une valeur correspondant à l'amplitude du pic le plus élevé ayant transité par son latch. La fin du signal de coïncidence déclenche la décharge de la capacité à courant constant, ainsi que deux portes d'horloge. La première dure $80\ \mu\text{s}$, soit le temps maximal que mettrait la capacité à se décharger, et donc l'amplitude maximale que peut convertir l'ADC (2 V). La deuxième se termine quand la capacité est déchargée. A la fermeture de cette porte, les impulsions d'une horloge fonctionnant à la fréquence de 26 MHz sont stockées dans un registre correspondant à un numéro de canal proportionnel à l'amplitude du signal initial. A la fin de la conversion, l'ADC génère un signal LAM (Look At Me) par le biais du rack CAMAC dans lequel il est inclus. Le système d'acquisition (Power Mac avec logiciel KMAX) prend alors le relais et stocke les données des détecteurs d'électrons avant et arrière et du détecteur de projectile dans leurs histogrammes respectifs.

2.3 Analyse des spectres d'électrons

Les spectres d'électrons de nos expériences nécessitent un ajustement pour que nous puissions en tirer les informations attendues, car les probabilités W_n sont fonction de la surface des pics qui ont tendance à empiéter les uns sur les autres. Nous allons donc décrire la méthode d'ajustement qui va nous permettre d'extraire de chaque spectre la distribution $\{W_n\}_n$

2.3.1 Décomposition des spectres en énergie

Les pics des électrons

Dans un spectre expérimental tel que celui présenté sur la **figure 2.5** les surfaces de pics correspondent en première approximation aux probabilités W_n d'émission de n électrons secondaires. Toutefois, entre les pics principaux nous pouvons discerner une sous-structure qui résulte du phénomène de rétrodiffusion des électrons dans le détecteur. Les électrons rétrodiffusés déposent seulement une partie de leur énergie dans le détecteur. On pourrait remédier à ce problème en plaçant le détecteur dans un champ magnétique, de sorte à faire revenir les électrons vers le détecteur, mais cette technique aurait l'inconvénient d'imposer une surface de détection plus large et une dégradation de la résolution en énergie. La contribution des électrons rétrodiffusés au spectre en énergie des électrons peut cependant être estimée à l'aide de considérations simples.

Le coefficient de rétrodiffusion d'électrons de 20 keV sur du silicium se situe selon la littérature entre 17 et 20 % [16]. Une bonne approximation est que la distribution en énergie des électrons rétrodiffusés est une distribution gaussienne d'énergie moyenne $kE_0 \approx 0.6 \times 20 \text{ keV} = 12 \text{ keV}$ et de largeur à mi-hauteur $\Delta E \approx 12 \text{ keV}$ [16] [1]. La réponse d'un détecteur à l'impact d'électrons uniques de 30 keV mesurée par AUMAYR *et al.* [1] correspond bien à une telle description. Les meilleurs ajustements de nos spectres expérimentaux ont été obtenus pour une valeur du coefficient de rétrodiffusion de 17 % (nous avons vérifié qu'une variation de ± 0.5 % de ce coefficient de rétrodiffusion p n'altère pas le résultat final). La procédure d'ajustement que nous décrivons ci-après est semblable à celle proposée par AUMAYR *et al.* [1].

Un spectre en énergie expérimental $S(E)$ peut être ajusté par une combinaison linéaire de fonctions normalisées $F_n(E)$, qui correspondent à l'émission de n électrons par particule incidente :

$$S(E) = \sum_{n=0}^{n_{max}} C_n F_n(E) \quad (2.1)$$

Si la rétrodiffusion des électrons était négligeable, les fonctions $F_n(E)$ seraient des gaussiennes centrées autour de $nV_0 = n \times 20 \text{ keV}$, pour une largeur à mi-hauteur ΔE_d . La contribution des électrons rétrodiffusés modifie l'expression de la fonction $F_n(E)$, en lui rajoutant une somme de pics $f_n(E, E_m, \Delta E_m)$, correspondant à la rétrodiffusion de $m = 0, 1, 2, \dots, n$ électrons :

$$F_n(E) = \sum_{m=0}^n P_n(m) f_n(E; E_m; \Delta E_m) \quad \text{pour } n \geq 1 \quad (2.2)$$

où les fonctions $f_n(E; E_m; \Delta E_m)$ sont des gaussiennes normalisées et centrées autour de

$$E_m = (n - mk)V_0 = n \times 20 \text{ keV} - m \times 12 \text{ keV} \quad (2.3)$$

et de largeur à mi-hauteur

$$\Delta E_m = \sqrt{(\Delta E_d)^2 + m(\Delta E)^2} \quad (2.4)$$

Les f_n sont pondérées par les probabilités $P_n(m)$ de rétrodiffusion de m électrons parmi n , ce qui correspond à une distribution binômiale, qu'on écrit en fonction du coefficient de rétrodiffusion de

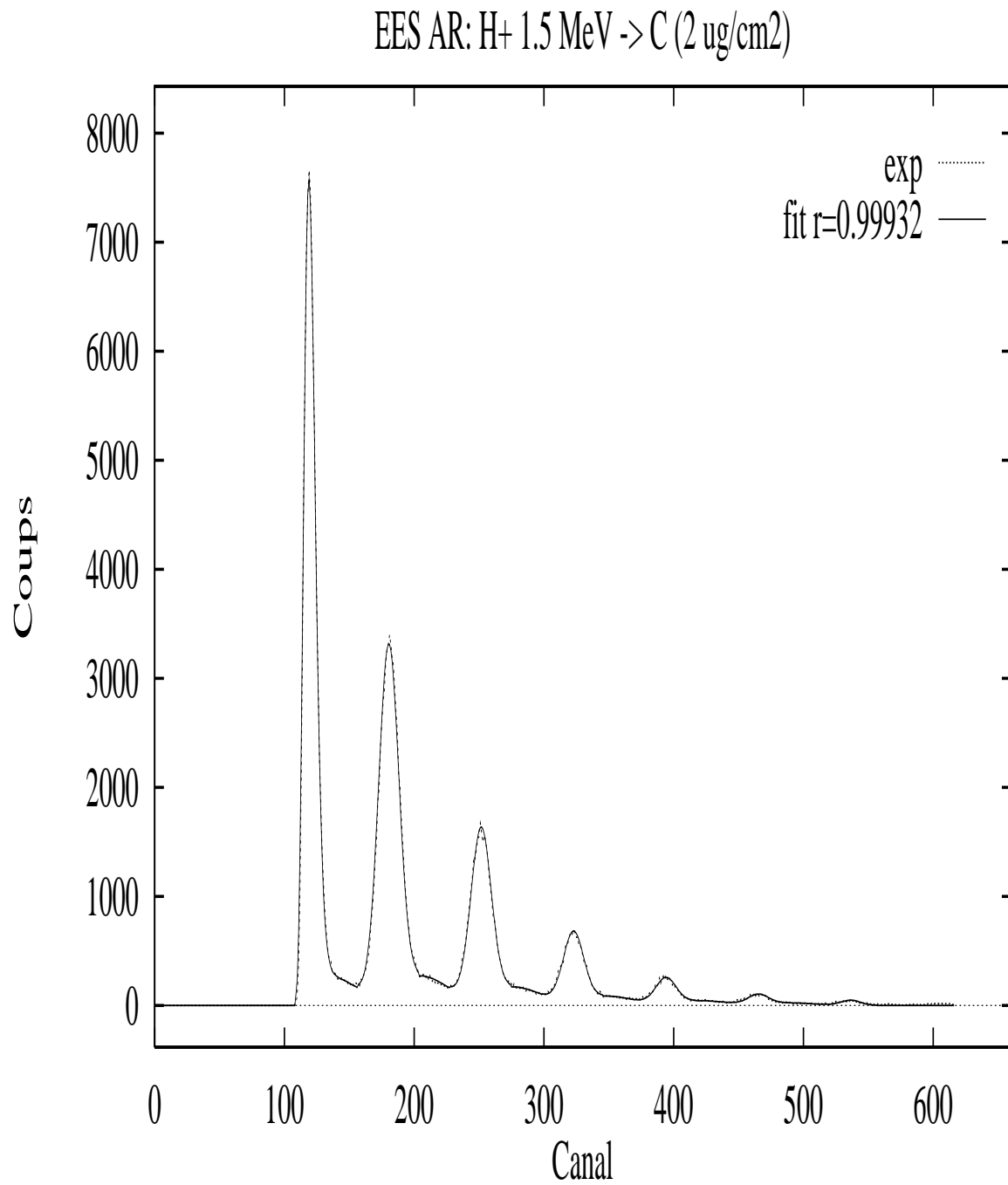


Figure 2.5 : *Spectre d'électrons secondaires (émission arrière) d'une cible mince de carbone bombardée par des protons de 1.5 MeV. L'ajustement fait intervenir la rétrodiffusion des électrons dans le détecteur ainsi que le bruit de fond pour le pic zéro.*

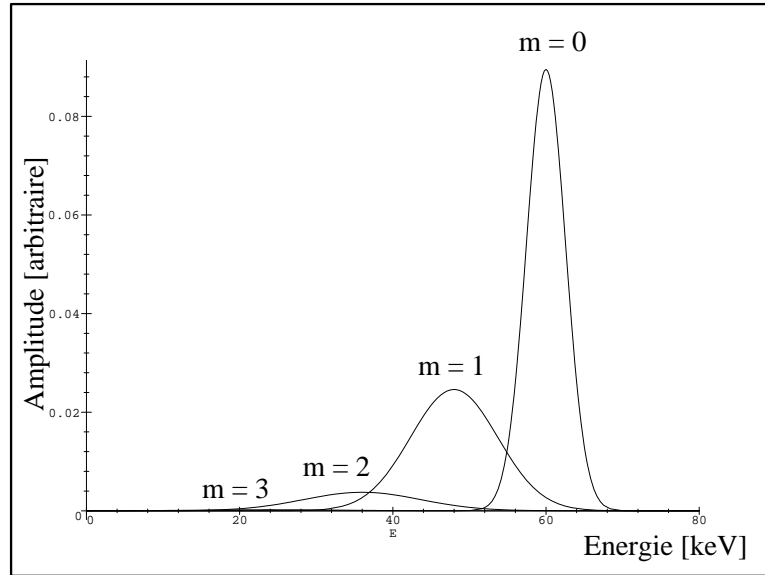


Figure 2.6 : Décomposition d'une fonction $F_3(E)$ faisant apparaître la contribution des $m = 0 \dots 3$ électrons rétrodiffusés. Le pic correspondant à 3 électrons rétrodiffusés ($m = 3$) se distingue difficilement de l'axe des abscisses, il est centré à 24 keV.

un électron :

$$P_n(m) = \frac{m!}{n!(n-m)!} p^m (1-p)^{n-m} \quad (2.5)$$

A titre d'exemple, la décomposition d'une fonction $F_n(E)$ correspondant à $n = 3$ électrons, et faisant clairement apparaître les pics dûs à m ($0 \leq m \leq 3$) électrons rétrodiffusés est représentée sur la **figure 2.6**. La **figure 2.7** montre plusieurs fonctions $F_n(E)$ pour différentes valeurs de n variant entre 1 et 30. On observe que pour des valeurs croissantes de n , la contribution des rétrodiffusés devient de plus en plus importante. Ainsi pour de grandes valeurs de n , le barycentre de ces fonctions devient notablement inférieur à $n \times 20$ keV.

Les fonctions $F_n(E)$ sont normalisées, c'est à dire :

$$\int_0^\infty F_n(E) dE \equiv 1 \quad (2.6)$$

Les paramètres d'ajustement C_n correspondent aux surfaces des contributions individuelles telles que celles montrées sur la **figure 2.7**, et donc après normalisation aux probabilités W_n :

$$W_n = \text{cste} \times C_n \quad (2.7)$$

Dans l'exemple de la **figure 2.5** on remarque que le spectre expérimental (pointillés) est bien reproduit par l'ajustement (courbe continue) avec un coefficient de corrélation $r = 0.9993$.

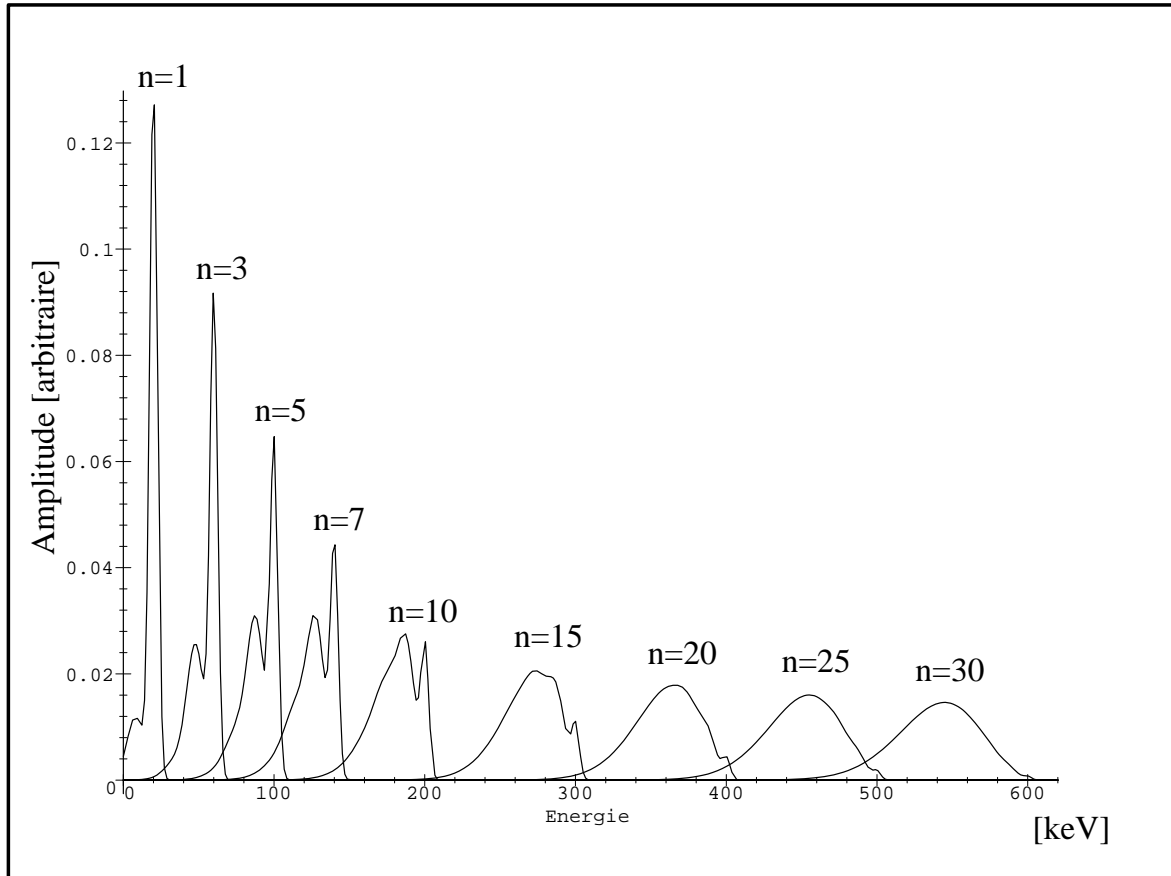


Figure 2.7 : Exemples de fonctions normalisées $F_n(E)$ pour différentes valeurs de n .

Le “pic zéro”

Il faut noter que pour obtenir les probabilités d'émission, nous avons besoin de connaître C_0 . Sa détermination est possible de deux façons. Premièrement en faisant la différence entre le spectre ajusté (pour $n \geq 1$) et le spectre expérimental, on obtient la somme des contenus des canaux correspondant à la contribution C_0 . Une autre façon de procéder est de modéliser la forme du pic zéro correspondant au bruit de fond de la détection, afin de pouvoir l'inclure dans la procédure d'ajustement.

Nous avons vu précédemment que l'ADC fonctionne en mode “*Follow mode & Peak Sensing*”. Cela se traduit par la sélection du signal de plus grande amplitude arrivé pendant l'ouverture de la porte, à condition toutefois que la dérivée du signal ait eu le temps de s'annuler durant ce laps de temps. Pour acquérir un événement correspondant à zéro électron, nous laissons l'ADC recevoir les signaux de la chaîne de détection des électrons réhaussés d'une tension continue de 50 mV. L'ensemble détecteur-préamplificateur-amplificateur se comportant *a priori* comme une antenne quand aucun électron n'est entré dans le détecteur silicium, il est facile de voir qu'alors nous convertissons un bruit blanc gaussien d'amplitude centrée autour de 50 mV. La mise en forme des signaux dans l'amplificateur prend un temps proportionnel à l'amplitude délivrée par le préamplificateur. Un signal intense occupera donc un temps de traitement plus important qu'un signal faible. En conséquence, le nombre d'événements de bruit de fond traités durant l'ouverture de la porte de l'ADC ne sera pas une constante, mais un nombre aléatoire fonction des intensités successives des ses fluctuations.

On peut modéliser cela [14] en identifiant le bruit de fond à une variable aléatoire réelle $G(\sigma)$ (VAR) d'ecart-type σ et de moyenne nulle. On fabrique ensuite une nouvelle VAR $P(M)$ à l'aide de $G(\sigma)$ comme suit : soit $M(n_d)$ la valeur maximale de $G(\sigma)$ obtenue pour n_d tirages de $G(\sigma)$. En répétant cette opération, on obtient une distribution $P(M(n_d))$ de toutes les valeurs $M(n_d)$.

Si nous notons f la densité de $G(\sigma)$ par rapport à la mesure de LEBESGUE :

$$f(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp \frac{-t^2}{2\sigma^2} \quad (2.8)$$

f est une fonction paire dont on ne considèrera que les valeurs obtenues pour t positif. Soit F le double de la primitive de f :

$$F(t) = \operatorname{erf}\left(\frac{t}{\sqrt{2}\sigma}\right) \quad (2.9)$$

F est définie sur t positif,

$$F(0) = 0 \quad (2.10)$$

$$F(\infty) = 1 \quad (2.11)$$

la loi du maximum de $M(n_d)$ pour n_d tirages est donnée par l'une des deux formules équivalentes suivantes :

$$P(M(n_d) \leq t) = F(t)^{n_d} \quad (2.12)$$

$$P(M(n_d) \in dt) = 2F(t)^{n_d-1} f(t)dt \quad (2.13)$$

Dans le cas où n_d n'est pas constant, mais est une variable aléatoire quelconque, il faut prendre en compte toutes les valeurs possibles de n_d . Si p_k représente la probabilité pour que n_d soit égal à k , on obtient à partir de l'équation (2.13) la relation suivante :

$$P(M \in dt) = \sum_k p_k P(M(k) \in dt) \quad (2.14)$$

$$= \int_k p(k) P(M(k) \in dt) dk \quad (2.15)$$

selon que n est une variable aléatoire discrète ou réelle.

Si, de plus, n_d est une variable aléatoire discrète (VAD) qui suit une loi uniforme entre $n_{d_{\min}}$ et $n_{d_{\max}}$ entiers positifs tels que $n_{d_{\min}} < n_{d_{\max}}$, et en supposant que n_d est indépendante de $G(\sigma)$, la relation (2.14) devient :

$$P(M \in dt) = \frac{2}{n_{d_{\max}} - n_{d_{\min}} + 1} \frac{F(t)^{n_{d_{\min}}-1} - F(t)^{n_{d_{\max}}}}{1 - F(t)} f(t) dt \quad (2.16)$$

Dans nos expériences, l'acquisition du bruit de fond est modélisable comme un ensemble d'événements gaussiens dont le nombre suit une loi aléatoire entre $n_{d_{\min}}$ et $n_{d_{\max}}$, durant l'ouverture de la porte de l'ADC. L'écart-type σ de la distribution des impulsions de fond est défini par la résolution ΔE_d du système de détection : $\Delta E_d = 2\sigma\sqrt{2\ln 2} \approx 5.5$ keV. L'expression analytique du pic zéro est la suivante :

$$F_0(E) \equiv P(E) = \frac{2}{n_{d_{\max}} - n_{d_{\min}} + 1} \frac{\operatorname{erf}\left(\frac{E}{\sqrt{2}\sigma}\right)^{n_{d_{\min}}-1} - \operatorname{erf}\left(\frac{E}{\sqrt{2}\sigma}\right)^{n_{d_{\max}}}}{1 - \operatorname{erf}\left(\frac{E}{\sqrt{2}\sigma}\right)} \times \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{E^2}{2\sigma^2}\right) \quad (2.17)$$

Le temps de mise en forme de chaque voie électron étant de $1 \mu s$, cela correspond à une fréquence d'acquisition de 1 MHz, et le bruit blanc supérieur à 1 MHz que nous détectons avec ce dispositif a une bande passante comprise entre 2 et 6 MHz à 3 dB. Nous aurons donc $n_{d_{\min}} \approx 2$ et $n_{d_{\max}} \approx 6$.

La figure 2.8 représente le pic zéro calculé pour une résolution $\Delta E_d = 5.5$ keV, $n_{d_{\min}} = 2$ et $n_{d_{\max}} = 6$. On peut noter la forme asymétrique du pic zéro, inhérente à sa définition.

La dépendance entre n_d et les fluctuations du bruit blanc appelle la remarque suivante. En toute rigueur, la VAD n_d n'est pas indépendante de la VAR gaussienne $G(\sigma)$, parce que le temps de mise en forme des signaux par la chaîne d'acquisition est proportionnel à leur intensité. Par conséquent, le nombre de pics détectés durant l'ouverture de la porte de l'ADC sera fonction de leur amplitude.

Il n'en reste pas moins que si l'intervalle des amplitudes du bruit de fond est faible, n_d peut alors être considéré comme variant suivant une loi uniforme entre deux valeurs assez proches. Dans ces conditions de variations faibles, la condition d'indépendance n'est plus aussi prépondérante et le résultat reste en très bon accord avec la forme du pic zéro observé durant nos expériences. D'autre part, un mauvais ajustement de ce pic sera souvent révélateur d'une dégradation des conditions de détection due par exemple à un parasitage de la ligne de masse, et sera souvent une aide précieuse au diagnostic de la manipulation.

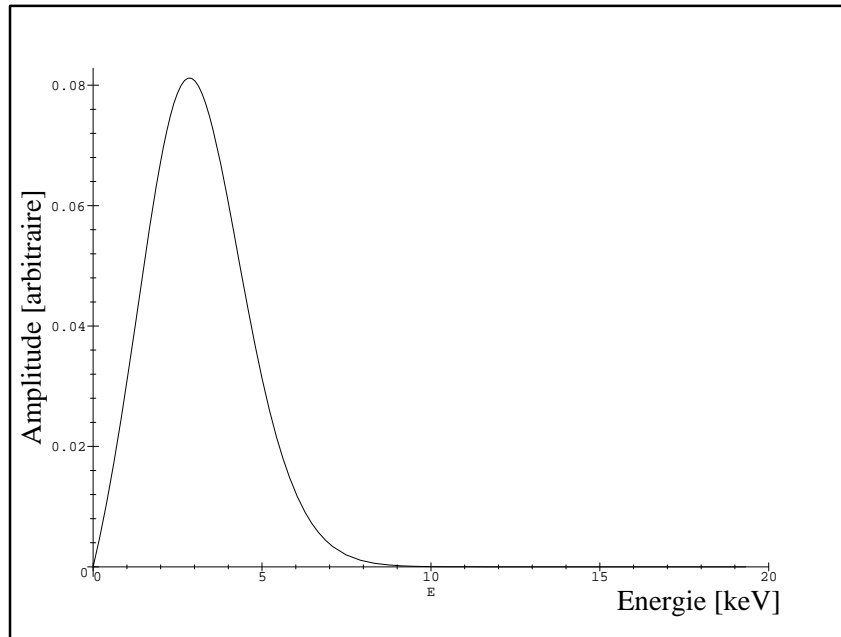


Figure 2.8 : Représentation du pic zéro avec $\Delta E_d = 5.5 \text{ keV}$, $n_{d_{\min}} = 2$ et $n_{d_{\max}} = 6$.

2.3.2 Principe de l'ajustement

Détermination des probabilités W_n en une itération

Le programme de dépouillement permet d'obtenir en une itération une première estimation des probabilités W_n . L'opération consiste à décomposer un spectre en ses différentes sous-structures correspondant aux fonctions $F_n(E)$, en partant des pics d'ordre les plus élevés vers ceux d'ordre inférieur, et qui pourrait s'écrire :

```

donne_dans "npicmax" le_numero_du_dernier_pic_visible_du_spectre
donne_les_rapports "RATIOS" Surface/hauteur_pour_les_pics_de_1_a_npicmax
donne_les_hauteurs_dans "DAT" des_pics
pour i:=npicmax a 1 faire
commencer
    Surf:=DAT[i]*RATIOS[i]
    construit_un_pic "i" d'ordre "i" et de surface "Surf"
    pour j:=1 a i-1 faire
commencer
        HTEMP[j]:=surface_du_pic_i_entre_(j*V0-DV0)_et_(j*V0+DV0)
        DAT[j]:=DAT[j]-HTEMP[j]
    finir
finir
finir
pour i:=1 a npicmax faire Wn[i]:=DAT[i]*RATIOS[i]
```

Cette description de l'algorithme peut aussi être complétée par l'explication suivante: *on tabule les hauteurs de tous les pics du spectre, puis en partant du pic d'ordre le plus élevé, on en reconstruit un de même hauteur, on retranche sa "traînée du côté basse énergie", on passe au pic d'ordre immédiatement inférieur, et on recommence jusqu'au premier pic.*

Cette méthode n'est pas sans inconvénient, en effet, il faut :

- Pouvoir déterminer la hauteur d'un pic donné avec une bonne précision (en prenant la moyenne d'un certain nombre de points autour du sommet du pic) malgré une statistique qui laisse d'autant plus à désirer, que la hauteur du pic est faible. Nous utilisons la méthode de minimisation de BRENT [15, p. 395–398] en minimisant le χ^2 (**formule (2.18)**) sur un nombre restreint de canaux autour du centroïde du pic principal (d'énergie nV_0).
- Prendre en considération le fait que plus l'ordre du pic est élevé, plus la hauteur du pic principal est faible. En conséquence, le rapport surface/hauteur est grand et correspond à un ΔW_n grand.
- Faire attention aux spectres qui présentent un bruit de fond à haute énergie dû à l'empilement des impulsions et qui ne sont plus exploitables par le programme (oscillations du type $\pm\infty$).

Malgré cela, il convient de préciser qu'une bonne connaissance de ces facteurs permet de bien comprendre les problèmes d'ajustement que l'on peut rencontrer, et d'y remédier, puisque l'on parvient sans peine à atteindre des coefficients de corrélation $r = 0.96$ à 0.97 dès la première itération.

Ajustement final

Pour que l'ajustement soit valable, il faut que les différents paramètres d'étalonnage du spectre comme la résolution en énergie de la chaîne d'acquisition ΔE_d , les paramètres de la droite d'étalonnage, ainsi que la bande passante du bruit de fond soient connus avec une grande précision.

Dans une première version du programme de dépouillement, les paramètres d'étalonnage utilisés étaient ceux déduits de spectres d'électrons correspondant à un nombre moyen d'électrons voisin de un (par exemple le spectre obtenu avec des protons d'énergie voisine de 2 MeV) dans lesquels la contribution des électrons rétrodiffusés des pics d'ordre supérieur à un interfère peu avec le pic principal d'ordre un. Une correction automatique des paramètres d'étalonnage n'était pas incluse dans le programme. Or ces paramètres expérimentaux ne sont pas rigoureusement constants d'une expérience à l'autre (modifications des réglages des modules électroniques ou évolution lente de la résolution énergétique des détecteurs). Il était donc nécessaire pour améliorer l'ajustement des spectres expérimentaux de refaire régulièrement des expériences avec des protons d'énergie élevée, ou d'ajuster manuellement ces paramètres, procédures longues et fastidieuses. Le programme de dépouillement a donc été amélioré pour tenir compte de ces facteurs. Avec une deuxième version du programme le dépouillement des spectres expérimentaux est devenu beaucoup plus rapide et est quasi automatique. Nous avons ainsi pu constater qu'après de longues séries d'expériences (2 à 3 mois) la dégradation de la résolution des détecteurs pouvait atteindre 0.5 keV, ce qui est loin d'être

négligeable dans l'ajustement des spectres. L'effort que nous avons fait également pour obtenir le meilleur ajustement du pic zéro nous aide à connaître les évolutions du bruit de fond des voies d'acquisition des signaux des électrons.

Une fois les hauteurs initiales des pics trouvées, il ne reste plus qu'à éventuellement affiner ce résultat à l'aide de l'algorithme du **SIMPLEX**, décrit dans [15, pp. 402–406]. Le critère de minimisation est le χ^2 , que nous définissons de la façon suivante :

$$\chi^2 = \sum_i \frac{(y_i(exp) - y_i(fit))^2 + \varepsilon}{y_i(exp) + y_i(fit) + \varepsilon} \quad (2.18)$$

$y_i(exp)$ et $y_i(fit)$ sont les contenus du canal i du spectre expérimental et du spectre calculé, respectivement, $\varepsilon \approx 10^{-7}$ est un nombre choisi suffisamment grand pour éviter les divisions par zéro sans perturber les calculs. Les $n + 1$ points de départ sont définis ainsi : le premier point $P_0(W_0, W_1, \dots, W_n)$ est le résultat de la première itération, les n points $\{P_i\}_{i \geq 1}$ suivants sont donnés par : $P_i(W_0, \dots, W_i + 5 \%, \dots)$. Nous avons fixé la précision de l'ajustement à 0.5 %, ainsi l'erreur imputable à l'ajustement est très inférieure à l'erreur liée à la reproductibilité des expériences.

Le rendement électronique ou nombre d'électrons émis par le projectile incident est donné par la valeur moyenne de la distribution $\{W_n\}$:

$$\gamma = \sum_{i=0}^n n W_n \quad (2.19)$$

La précision du rendement électronique mesuré est estimée inférieure à 5 %, pour une statistique correcte (ajustement possible).

2.3.3 Détermination du rendement électronique par la méthode du barycentre

Nous avons vu que le pic de surface S correspondant à la détection de n ($n \geq 1$) électrons est défini par la fonction $F_n(E)$ de la **relation (2.2)** comme une somme de $n + 1$ gaussiennes, distantes deux à deux de $k \times V_0$, et de poids respectifs S_n obéissant à la loi binômiale (*cf. équation (2.5)*). Le centre de gravité d'une gaussienne correspondant à sa valeur moyenne, on peut donc écrire que le barycentre \overline{OG}_n du pic n est défini par :

$$\overline{OG}_n = \frac{\sum_{m=0}^n S_m \times V_0 \times (n - mk)}{\sum_{m=0}^n S_m} \quad (2.20)$$

or :

$$S_m = S \times \frac{m!}{n!(n-m)!} p^m (1-p)^{n-m} \equiv S \times P_n(m) \quad (2.21)$$

La probabilité de rétrodiffusion $P_n(m)$ obéit à la loi binômiale et est donnée par l'**équation (2.5)** donc :

$$\overline{OG}_n = \frac{\sum_{m=0}^n S V_0 P_n(m) (n - mk)}{\sum_{m=0}^n S P_n(m)} \quad (2.22)$$

$$\overline{OG}_n = \frac{S V_0 \sum_{m=0}^n P_n(m) (n - mk)}{S \sum_{m=0}^n P_n(m)} \quad (2.23)$$

or $\sum_{m=0}^n P_n(m) = 1$ ce qui donne :

$$\overline{OG}_n = V_0 \times \left(\sum_{m=0}^n P_n(m)(n - mk) \right) \quad (2.24)$$

ou encore :

$$\overline{OG}_n = V_0 \times \left(n - k \sum_{m=0}^n m \times P_n(m) \right) \quad (2.25)$$

sachant que¹ $\sum_{m=0}^n m \times P_n(m) = np$, on arrive finalement à l'expression suivante, pour le centre de gravité du pic correspondant à n électrons :

$$\overline{OG}_n = nV_0(1 - kp) \quad (2.26)$$

(on remarque que dans le cas $p = 0$, c'est à dire en l'absence de rétrodiffusion des électrons, le barycentre du pic correspond bien à la valeur moyenne nV_0).

Dans le cas d'un spectre constitué de $n + 1$ pics, on peut dire que son centre de gravité sera donné par :

$$\overline{OG} = \frac{\sum_{j=0}^n S_j \times \overline{OG}_j}{\sum_{j=0}^n S_j} \quad (2.27)$$

où S_j est la surface du pic j (S_0 pour le pic zéro) et \overline{OG}_j la position de son barycentre :

$$\overline{OG} = V_0(1 - kp) \frac{\sum_{j=0}^n j S_j}{\sum_{j=0}^n S_j} \quad (2.28)$$

$$\overline{OG} = V_0(1 - kp) \sum_{j=0}^n j \frac{S_j}{\sum_{k=0}^n S_k} \quad (2.29)$$

Sachant que $\frac{S_j}{\sum_{k=0}^n S_k} \equiv W_j$ (probabilité d'émission de j électrons) et que $\sum_{j=0}^n j W_j = \gamma$ (nombre moyen d'électrons émis par projectile incident) le rendement électronique s'écrit finalement :

$$\overline{OG} = \gamma V_0(1 - kp) \quad (2.30)$$

d'où :

$$\boxed{\gamma = \frac{\overline{OG}}{V_0(1 - kp)}} \quad (2.31)$$

Cette dernière équation permet donc de calculer directement le rendement électronique à partir d'un spectre d'électrons secondaires, sans en extraire la distribution statistique. Elle est donc d'un intérêt primordial pour les spectres à faible statistique de comptage comme ceux obtenus en coïncidence avec des atomes neutres qui sont très minoritaires dans le faisceau émergent des cibles. Il convient toutefois au préalable de tester la fiabilité de cette méthode en fonction de la statistique de comptage.

Les rendements électroniques obtenus par les deux méthodes, barycentre du spectre et valeur moyenne de la distribution statistique déduite de l'ajustement du spectre, sont en bon accord pour

¹moyenne de la loi binômiale.

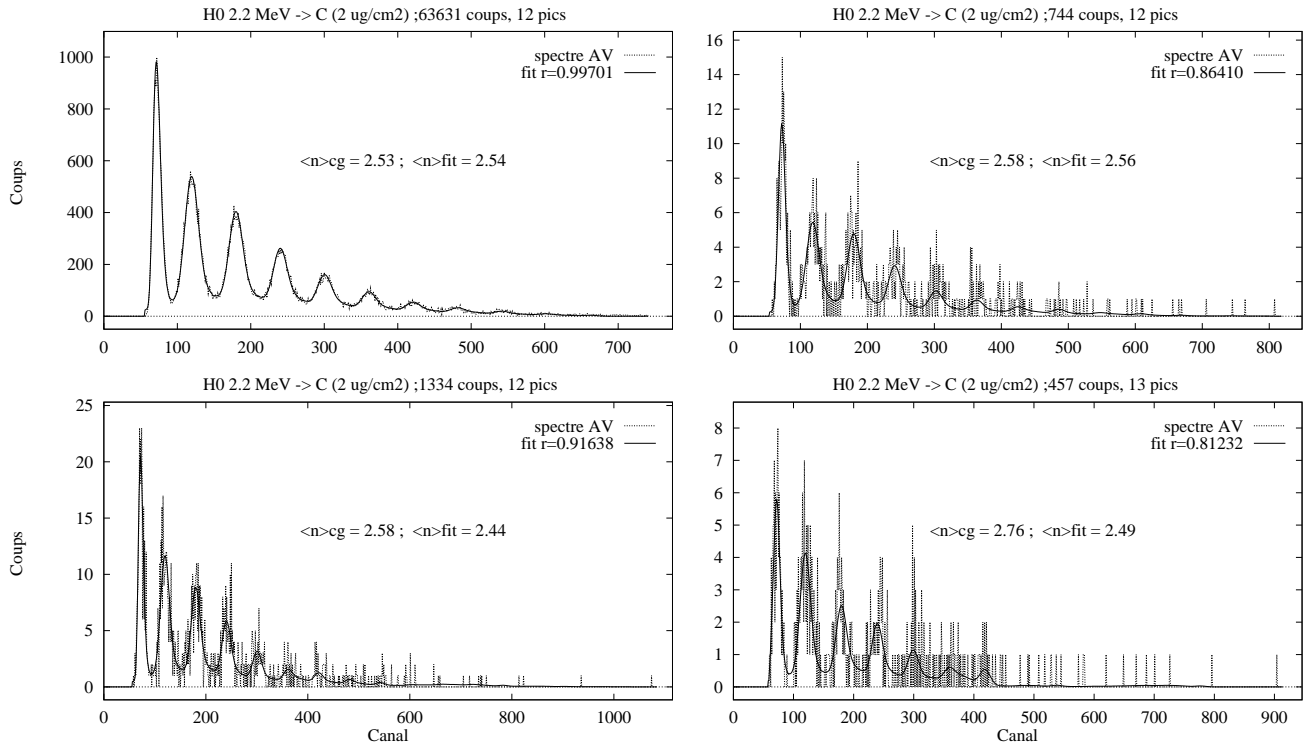


Figure 2.9 : Comparaison des rendements électroniques γ obtenus par la méthode du centre de gravité et par l'ajustement des spectres pour des spectres présentant une statistique de plus en plus faible (émission avant mesurée en coïncidence avec les protons émergeant d'une feuille mince de carbone pour un faisceau incident d'atomes H^0 de 2 MeV).

des spectres présentant une bonne statistique de comptage, la différence observée étant au plus de 3 %. C'est le cas avec la plupart de nos spectres expérimentaux qu'on peut obtenir aisément avec un nombre total d'événements supérieur à 10000. Les spectres d'électrons de la **figure 2.9** montrent qu'un désaccord entre les deux méthodes apparaît pour un nombre total d'événements inférieur à 1500. Cette valeur a donc constitué une limite inférieure pour l'acquisition de nos spectres expérimentaux avec des taux de coïncidence faibles. Il faut néanmoins remarquer que les exemples de la **figure 2.9** constituent des cas particulièrement favorables à la procédure d'ajustement des spectres. En effet, l'ajustement de spectres constitués de seulement un millier d'événements a pu être réalisé grâce à la prépondérance des pics d'ordre zéro et un qui les rend facilement ajustables. Une telle situation ne se rencontre que dans le cas de rendements électroniques relativement faibles comme ceux induits par des protons ou des atomes H^0 .

De manière générale il convient d'être prudent car pour des rendements plus élevés, d'énormes problèmes d'ajustement apparaissent sur les spectres à statistique faible, et dans ce cas l'information donnée par le barycentre du spectre est essentielle.

2.3.4 Dépouillement d'un spectre

Les probabilités d'émission W_n sont obtenues par :

$$W_n = \frac{C_n}{\sum_{i=0}^{n_{max}} C_i} \quad (2.32)$$

où C_i représente la surface du pic d'ordre i .

La statistique de l'émission électronique secondaire est généralement traitée à partir de distributions statistiques courantes. Par exemple, la distribution de POISSON :

$$P_n(\mu) = \frac{\mu^n}{n!} e^{-\mu} \quad (2.33)$$

pour laquelle μ est la moyenne.

La distribution binômiale :

$$P_n(N, p) = \frac{n!}{N!(N-n)!} p^n (1-p)^{(N-n)} \quad (2.34)$$

est un modèle de n épreuves homogènes indépendantes de BERNOULLI de probabilité de succès p .

La loi de GAUSS :

$$P_n(\mu, \sigma) = \frac{e^{-\frac{(n-\mu)^2}{2\sigma^2}}}{\sigma\sqrt{2\pi}} \quad (2.35)$$

où μ représente la moyenne et σ la largeur (écart-type) de la distribution autour de sa moyenne.

De meilleurs résultats sont cependant obtenus à l'aide de la distribution de PÓLYA :

$$P_n(\mu, b) = \frac{\mu^n}{n!} (1+b\mu)^{-n-1/b} \prod_{i=1}^n [1+(i-1)b] \quad (2.36)$$

où b décrit la déviation par rapport à une distribution de POISSON et μ est sa valeur moyenne. Le rôle du paramètre b n'est pas clairement défini dans la littérature, mais nous verrons plus loin que son interprétation physique est en train de voir petit à petit le jour.

La **figure 2.10** donne un exemple de présentation des résultats du dépouillement d'un spectre d'électrons. L'information y est regroupée en plusieurs parties ;

Le nom du spectre ainsi que les conditions expérimentales de l'acquisition se trouvent en haut de la page et aident à resituer l'expérience dans son contexte.

Les paramètres d'étalonnage du spectre viennent ensuite. La tension V_0 appliquée à la cible qui fixe l'énergie des électrons à leur entrée dans les détecteurs, la résolution de la chaîne d'acquisition ΔE_d , la probabilité p de rétrodiffusion d'un électron d'énergie V_0 dans les détecteurs, l'intervalle en période du bruit blanc (pour le pic zéro), ainsi que les paramètres de la droite d'étalonnage sont aisément identifiables.

Les résultats globaux du dépouillement sont les rendements déterminés par le barycentre du spectre \bar{n}_{cg} et par l'ajustement du spectre \bar{n}_{fit} , ainsi que les paramètres de plusieurs distributions classiques (loi de PÓLYA, de POISSON, binômiale ou encore gaussienne) ajustées à la distribution $\{W_n\}$ expérimentale.

Nom du spectre : "ar305" — (235388 évènements, 7 pics)

EES : H⁺ 1,480 MeV → cible 46 (C 2μg/cm²) en coïncidence avec H⁺, H⁰ V₀=20101 V

Paramètres d'étalonnage : V₀ = 20.101keV — ΔE_d = 5.1keV — p = 17.17 % — n_{dmin} = 3 — n_{dmax} = 5

Droite d'étalonnage : E [keV] = -30.805 + 0.2822 × canal

$\langle n \rangle_{cg}$	$\langle n \rangle_{fit}$	μ_{polya}	b_{polya}	$\mu_{poisson}$	$\mu_{binom} = N \times p$	N_{binom}	p_{binom}	μ_{gauss}	σ_{gauss}
1.26	1.29	1.25	0.260	1.22	1.22	1088	0.0011	0.63	1.8620

Les ajustements suivent les lois :

- Pólya_n(μ, b) = $\frac{\mu^n}{n!} (1+b\mu)^{-(n+1/b)} \prod_{i=1}^n [1+(i-1)b]$
- Poisson_n(μ) = $\frac{\mu^n}{n!} e^{-\mu}$
- Binômiale_n(N, p) = $\binom{N}{n} p^n (1-p)^{(N-n)}$
- Gaussienne_n(μ, σ) = $\frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp(-\frac{(n-\mu)^2}{2\sigma^2})$

Quelques propriétés de ces lois :

- $\lim_{b \rightarrow 0} \text{Pólya}_n(\mu, b) = \text{Poisson}_n(\mu)$
- $p \ll 1 \Rightarrow \text{Binômiale}_n(N, p) \simeq \text{Poisson}_n(Np)$
- $\sigma^2 > \mu \Rightarrow \text{Gaussienne}_n(\mu, \sigma) \simeq \text{Binômiale}_n(N, p)$
avec : $\mu = Np$ and $\sigma = \sqrt{Np(1-p)}$

n	W _n (exp)	Pólya	Poisson	Binômiale	Gaussienne
0	33.48%	33.94%	29.51%	29.55%	20.25%
1	31.80%	31.97%	36.02%	36.05%	21.00%
2	18.55%	18.97%	21.98%	21.97%	16.31%
3	9.14%	9.06%	8.94%	8.91%	9.50%
4	3.99%	3.80%	2.73%	2.71%	4.15%
5	1.83%	1.46%	0.67%	0.66%	1.36%
6	1.20%	0.53%	0.14%	0.13%	0.33%
r =		0.99992	0.97819	0.97833	0.97051

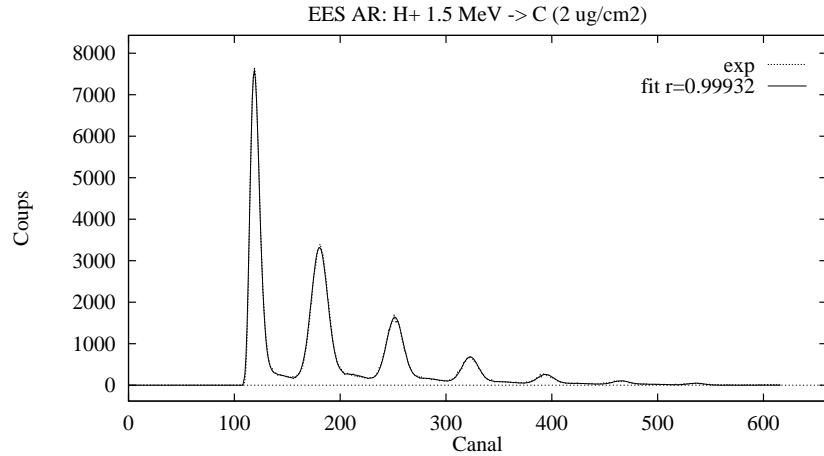
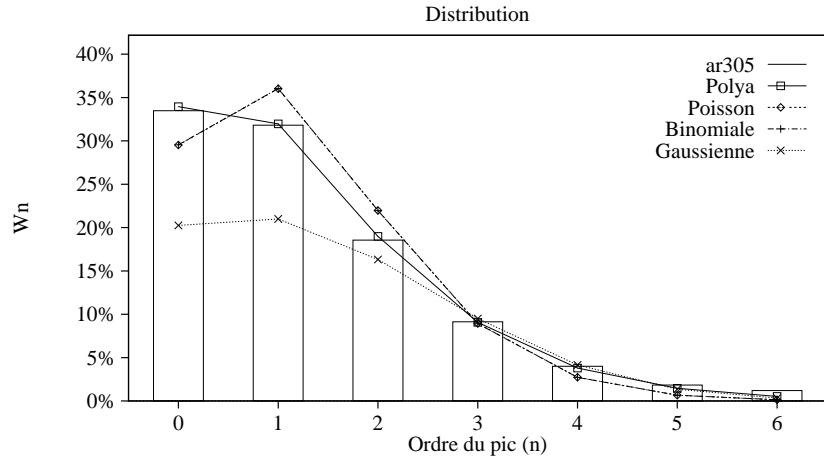


Figure 2.10 : Exemple d'une feuille de résultats de dépouillement d'un spectre expérimental.

Le **tableau de l'ajustement des W_n** par les différentes lois citées ci-dessus, ainsi que les coefficients de corrélation r .

Le **graphique de la distribution** des électrons déduite du spectre expérimental et son ajustement par les différentes lois statistiques.

Le **spectre expérimental** et le résultat de la procédure d'ajustement.

2.4 Analyse des spectres biparamétriques

Les spectres d'électrons que nous avons discutés jusqu'ici sont les spectres monoparamétriques correspondant à chacune des voies avant et arrière de détection des électrons. Ils sont générés par le logiciel KMAX, qui gère l'acquisition des informations codées par l'ADC. Ce logiciel permet aussi de constituer simultanément un spectre biparamétrique à partir des informations en provenance des deux voies de détection des électrons. Nous allons présenter dans cette partie la technique de dépouillement des spectres biparamétriques.

2.4.1 Décomposition des spectres et ajustement

Dans le cas d'un spectre monoparamétrique, nous avons une distribution unidimensionnelle de pics $F_n(E)$ (cf. **formule (2.2) p. 49**) se recouvrant partiellement. Ainsi le contenu de chaque canal k (que nous noterons $C(k)$) peut s'écrire comme la somme de toutes les fonctions $F_n(k)$ en ce canal, soit :

$$C(k) = \sum_{i=0}^{n_{\text{pics}}} F_i(k) \quad (2.37)$$

L'acquisition d'un spectre biparamétrique consiste à incrémenter le contenu d'une cellule (x, y) chaque fois qu'un signal x est reçu en provenance d'une voie (ex : voie avant) et qu'un signal y est reçu en provenance de l'autre voie (ex : voie arrière). De cette façon, comme montré sur la **figure 2.11** le contenu de chaque point (x, y) du spectre (que nous noterons $P(x, y)$) est en fait le produit des sommes $\sum_{i=0}^{n_{\text{AVmax}}} F_i(x)$ et $\sum_{j=0}^{n_{\text{ARmax}}} F_j(y)$, soit :

$$P(x, y) = \sum_{i=0}^{n_{\text{AVmax}}} \sum_{j=0}^{n_{\text{ARmax}}} F_i(x) F_j(y) \quad (2.38)$$

Ce principe simple préside à l'ajustement de tout spectre biparamétrique, avec cependant quelques précautions, car de la même façon que pour dépouiller un spectre monoparamétrique, il faut commencer par évaluer les pics d'ordres réels (la somme des ordres des deux pics le composant) les plus élevés. Cela permet de résoudre le problème d'empiètement d'un pic sur le pic d'ordre inférieur, dû à la contribution à basse énergie des électrons rétrodiffusés, comme on peut le voir sur la **figure 2.7 p. 52**. Ainsi l'ajustement commence invariablement par le pic $(n_{\text{AVmax}}, n_{\text{ARmax}})$ puis

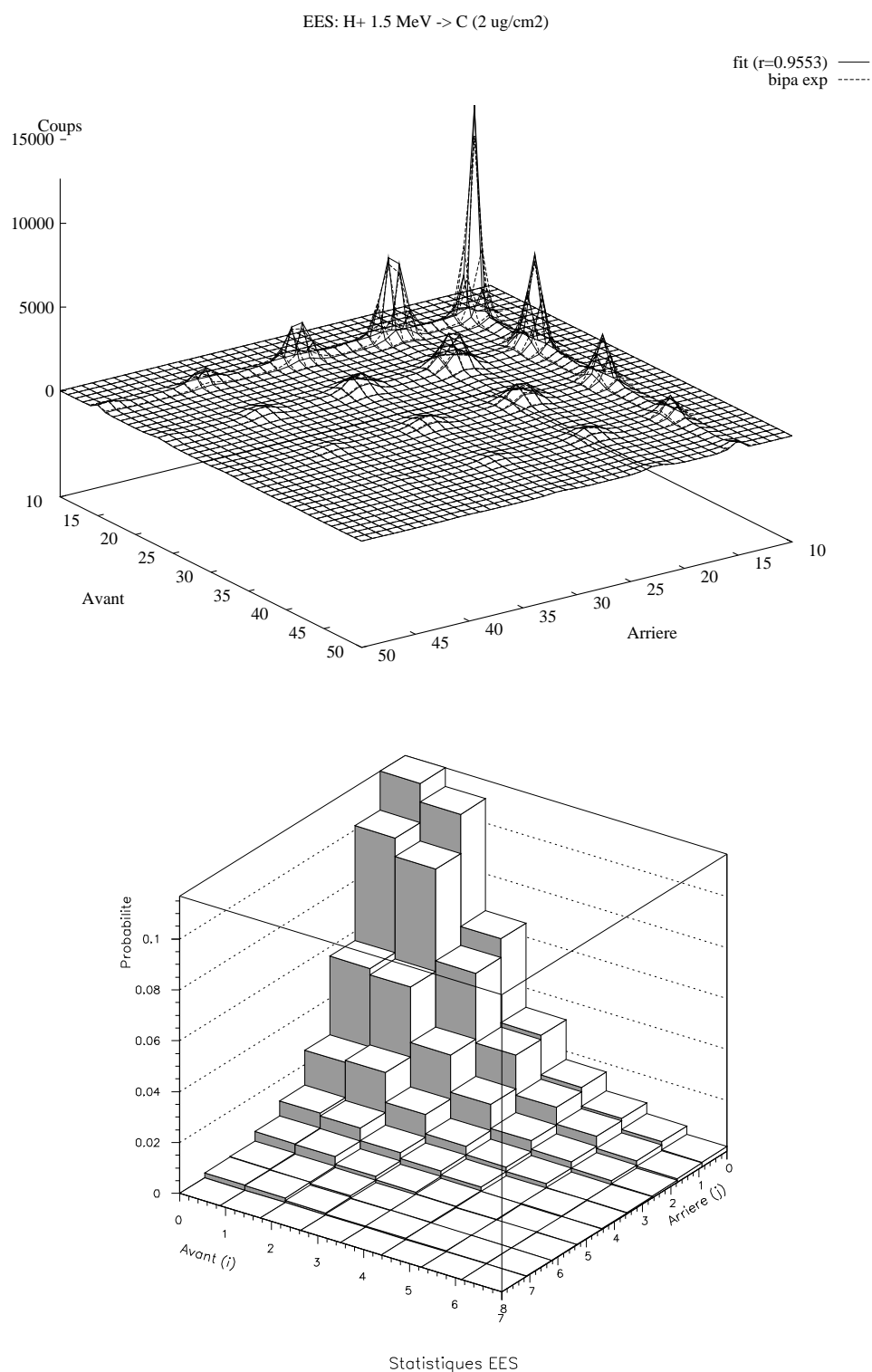


Figure 2.11 : Exemple de dépouillement d'un spectre biparamétrique des électrons émis par une cible mince de carbone (145 \AA inclinée à 45°) traversée par des protons de 1.5 MeV.

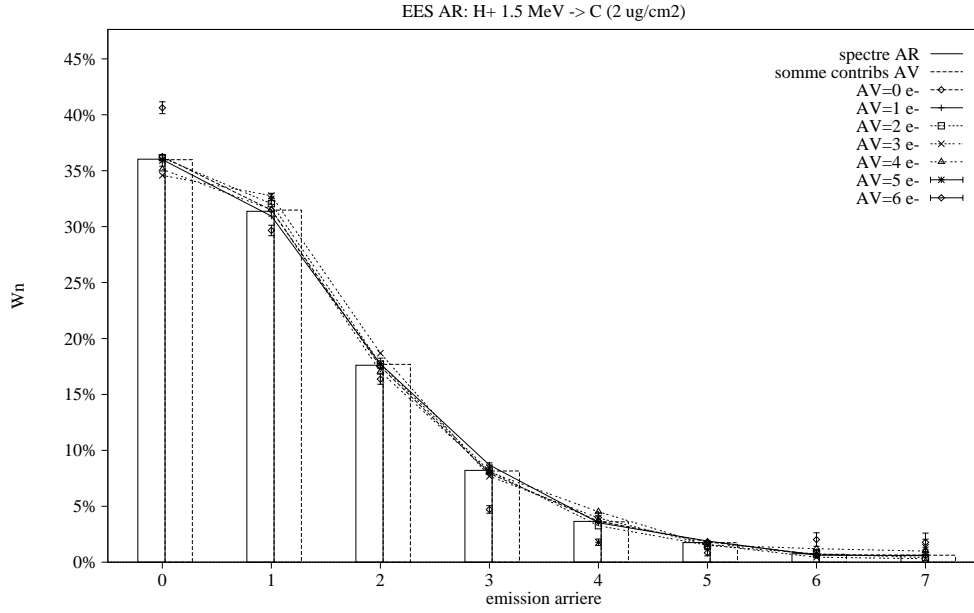


Figure 2.12 : Mise en évidence de non corrélation entre les émissions électroniques avant et arrière d'une cible mince de carbone (145 Å inclinée à 45°) pour des protons de 1.5 MeV.

se poursuit par les suivants $(n_{AV_{\max}} - 1, n_{AR_{\max}})$ $(n_{AV_{\max}}, n_{AR_{\max}} - 1)$ et ainsi de suite jusqu'aux pics d'ordre zéro $(0, 0)$.

Ce procédé donne finalement la distribution des électrons émis simultanément par les deux faces d'une cible mince au passage d'un projectile incident, telle que celle montrée sur la **figure 2.11**.

2.4.2 Analyse des distributions $\{W_n\}_{av}$ $\{W_n\}_{ar}$

L'intérêt de l'acquisition et du dépouillement de spectres biparamétriques est qu'ils permettent d'étudier les corrélations entre les émissions avant et arrière. Le terme de corrélation est employé lorsque la distribution statistique des électrons émis par une face de la cible est fonction du nombre d'électrons émis par l'autre face. A partir de la distribution en deux dimensions des électrons émis, nous pouvons construire la distribution des électrons émis par une face de la cible, en coïncidence avec i électrons émis par l'autre face et cela pour toutes les valeurs de i .

Par exemple, en normalisant la i -ème rangée de la distribution biparamétrique de la **figure 2.11**, nous obtenons les distributions des électrons émis à l'arrière en coïncidence avec i électrons émis sur l'avant. Les distributions arrière ainsi obtenues sont représentées par les séries de points sur la **figure 2.12**. Les histogrammes de cette figure représentent les distributions obtenues à partir du spectre monoparamétrique arrière ("*spectre AR*") ainsi que la somme des contributions de toutes les distributions obtenues avec i électrons émis simultanément sur l'avant ("*somme contribs AV*") qui sont identiques bien évidemment. On peut constater que toutes les distributions arrière se superposent quel que soit le nombre i d'électrons émis à l'avant. De plus, elles sont identiques à la distribution obtenue à partir du spectre monoparamétrique de l'émission arrière. Un tel résultat est caractéristique d'une absence de corrélation entre émission avant et émission arrière.

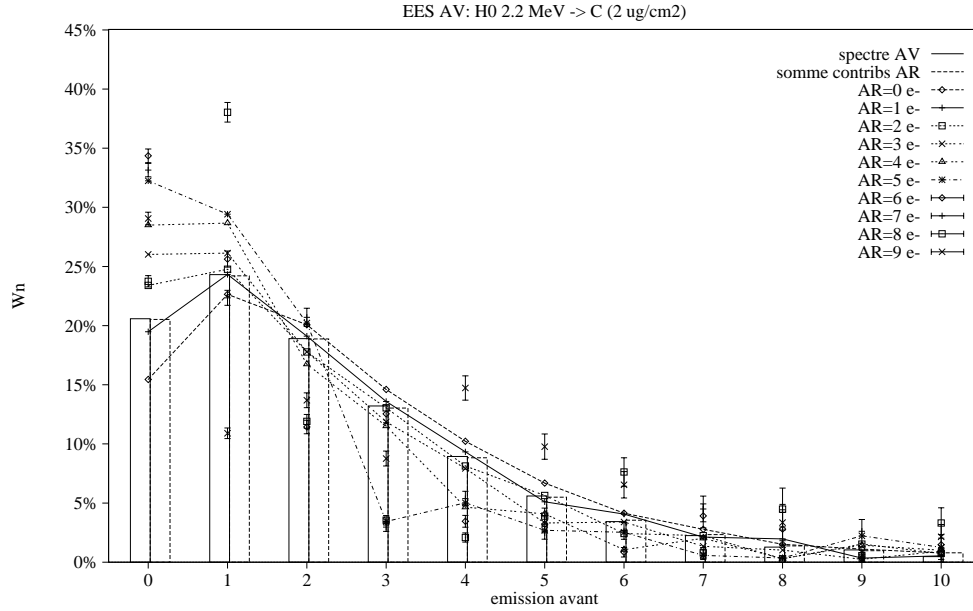


Figure 2.13 : *Corrélations entre les émissions électroniques avant et arrière d'une cible mince de carbone (145 Å inclinée à 45°) pour des H⁰ de 2.2 MeV.*

Par contre en cas de corrélations entre émission avant et émission arrière, nous n'obtiendrons plus une superposition des distributions associées à i électrons. Un exemple est montré par les distributions d'électrons de la **figure 2.13**. Il s'agit du résultat du dépouillement du spectre biparamétrique avant-arrière de l'émission électronique secondaire induite par des atomes H⁰ de 2.2 MeV traversant la même cible mince de carbone. Les électrons émis étaient détectés en coïncidence avec les protons émergents. On observe qu'un nombre élevé d'électrons émis à l'arrière ($2 < j < 9$) correspond à une probabilité d'observer 0 ou 1 électron à l'avant supérieure à la probabilité moyenne (donnée par les valeurs de l'histogramme) et donc à un faible nombre d'électrons émis à l'avant. A l'inverse, lorsque 0 ou seulement 1 électron est émis à l'arrière, la probabilité d'observer 0 ou 1 électron à l'avant est inférieure à la probabilité moyenne, d'où un grand nombre d'électrons émis à l'avant.

A partir de ces deux exemples nous pouvons examiner différents processus d'interaction des projectiles incidents susceptibles de conduire à des corrélations entre les émissions électroniques arrière et avant d'une cible mince.

La possibilité de corrélation entre les émissions électroniques arrière et avant d'une cible mince doit être reliée à la nature des processus de dépôt d'énergie de l'ion incident dans le solide. En effet il ne faut pas considérer une perte d'énergie moyenne le long du parcours de l'ion, mais un ensemble de collisions successives avec les électrons du solide, se produisant à des distances moyennes égales au libre parcours moyen de l'ion.

Considérons par exemple le cas d'un projectile ne changeant pas de nature dans le solide (comme des protons) et ne subissant qu'une seule collision avec un électron du solide (libre parcours moyen grand devant l'épaisseur de la cible). L'électron de première génération qui a acquis une énergie δE lors de la collision projectile-électron, va à son tour céder une partie de son énergie dans des interactions inélastiques, générant ainsi une cascade d'électrons secondaires. Pour un nombre total donné d'électrons produits dans la cascade, le nombre d'électrons émis par chacune des faces de la cible est

défini par l'intersection du volume de cascade par chacune des faces. Il dépend donc de la profondeur à laquelle a eu lieu la collision initiale projectile-électron. En conséquence l'émission électronique arrière et l'émission électronique avant ne sont pas indépendantes. Il est évident néanmoins que cette situation correspondant à une collision unique à grand transfert d'énergie est loin de la réalité des interactions d'ions d'énergie de l'ordre du MeV dans les solides. Le grand nombre de collisions subies par un ion incident lors de la traversée d'une cible solide, même d'épaisseur voisine de 100 Å, fait disparaître la possibilité d'observer des corrélations entre émission arrière et émission avant.

Le cas de projectiles composites, qui changent de nature au cours de la traversée de la cible solide, constitue une situation quelque peu différente, qui peut être illustrée par l'exemple des atomes H^0 incidents de 2.2 MeV. Les atomes H^0 vont pour le plus grand nombre subir des ionisations dans le solide. Le faisceau émergent est ainsi constitué essentiellement de protons (la fraction de neutre émergent est seulement de $3 \cdot 10^{-3}$) et nos expériences ont montré qu'environ 50 % des électrons perdus par les atomes H^0 sont également transmis à travers la cible. L'émission électronique arrière induite par des H^0 incidents est en fait la somme des contributions d'un atome H^0 avant ionisation (sur une profondeur moyenne près de la surface égale à son libre parcours moyen ($\lambda_0 \approx 30$ Å)), d'un proton et d'un électron après ionisation (depuis la profondeur λ_0 jusqu'à la profondeur moyenne d'échappement des électrons ($\lambda_{se} \approx 100$ Å)). Par contre l'émission avant est dans 50 % des cas la contribution d'un proton seul et dans 50 % des cas la somme des contributions d'un proton et d'un électron. On conçoit alors aisément que les émissions arrière et avant dépendent de la profondeur à laquelle a eu lieu l'ionisation de H^0 . Pour une ionisation près de la surface d'entrée, l'émission arrière est élevée, pratiquement égale à la somme des émissions induites par un proton et un électron. Par contre l'émission avant est plus probablement égale à celle d'un proton seul, car l'électron du projectile subit un grand nombre de diffusions tout au long de son trajet dans la cible et a donc peu de chances d'atteindre la face de sortie de la cible. A l'inverse pour une ionisation ayant lieu en profondeur dans le solide, l'émission arrière est d'autant plus faible que la contribution relative des atomes H^0 est importante car ces atomes produisent une émission électronique limitée du fait de l'écrantage mutuel du proton et de l'électron lié. L'électron du projectile, qui a alors une épaisseur de cible plus faible à traverser, a une grande probabilité d'être émis à l'avant et de produire ses propres électrons de cascade près de la face de sortie de la cible. En conséquence l'émission avant est plus probablement la somme des contributions d'un proton et d'un électron. En résumé, une intense émission électronique arrière, associée à une émission électronique avant réduite, est plus probablement le résultat d'ionisations des atomes H^0 près de la surface d'entrée de la cible, alors que la situation inverse est plus probablement imputable à des ionisations se produisant plus en profondeur dans la cible. Nous aurons l'occasion de discuter plus en détail l'incidence des différents processus d'interaction des atomes H^0 sur l'émission électronique de cibles minces de carbone dans le chapitre suivant.

Bibliographie

- [1] F. AUMAYR, G. LAKITS, H. WINTER,
Appl. Surf. Sci., **47**(1991)139.
- [2] O. BECKER, S. DELLA-NEGRA, Y. LE BEYEC, K. WIEN,
Nucl. Instr. Meth. B, **16**(1986)321.
- [3] O. BENKA, E. STEINBAUER, O. BOLIK, T. FINK,
Nucl. Instr. Meth. B, **93**(1994)156.
- [4] A. BILLEBAUD,
thèse de doctorat, UNIVERSITÉ LYON I, (1995).
- [5] C.F.G. DELANAY, P.W. WALTON,
IIIE Trans. Nucl. Sci., **NS13**(1966)742.
- [6] S. DELLA-NEGRA, D. JACQUET, I. LORTHIOIS, Y. LE BEYEC, O. BECKER, K. WIEN,
J. Mass Spect. and Ion Phys., **53**(1983)215.
- [7] C.G. DREXLER, R.D. DuBOIS,
Phys. Rev. A, **53**(1996)1630.
- [8] M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX, M. AUZAS,
Phys. Rev. A, **16**(1977)2323.
- [9] M.A. GRUNTMAN, A.A. KOZOCHKINA, V.B. LEONAS,
Phys. Instr. and Exper. Techn., **3**(1989)157.
- [10] A.A. KOZOCHKINA, V.B. LEONAS, M. WITTE,
Nucl. Instr. Meth. B, **62**(1991)51.
- [11] G. LAKITS, F. AUMAYR, H. WINTER,
Rev. Sci. Instrum., **60**(1989)3151.
- [12] V.B. LEONAS,
Nucl. Instr. Meth. B, **48**(1990)597.

- [13] S. MARTIN, L. CHEN, J. BERNARD, A. DENIS, J. DESESQUELLES,
Phys. Rev. A, (à paraître).
- [14] D. PIAU, Département de Probabilités de l'UNIVERSITÉ LYON I,
communication privée.
- [15] W.H. PRESS, S.A. TEUKOLSKI, W.T. VETTERLING, B.P. FLANNERY,
“*Numerical Recipes in fortran The Art of scientific computing – second Edition*” —
Cambridge University Press (1992).
- [16] L. REIMER,
“*Scanning Electron Microscopy*” —Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg, (1985).
- [17] Y. YAMAZAKI, K. KUROKI,
Nucl. Instr. Meth. A, **262**(1987)118.
- [18] J.F. ZIEGLER, J.P. BIRSACK, U. LITTMARK,
“*The stopping & range of ions in solids*” —Vol. 1(1985).

Emission électronique induite par des atomes H^0

3.



LES TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES que nous venons de décrire ont été appliquées à l'étude de la multiplicité des électrons émis simultanément par les deux faces de feuilles minces de carbone, lorsque celles-ci sont bombardées par des atomes H^0 d'énergie comprise entre 0.27 et 2.2 MeV. Cette étude repose sur une comparaison avec l'émission électronique induite par des protons dans les mêmes conditions expérimentales. Le processus d'ionisation de l'atome H^0 au cours de ses interactions avec les électrons des cibles solides fait que ce projectile constitue un exemple simple de projectile composite. L'émission électronique induite par les interactions simultanées dans le solide de trois projectiles différents de même vitesse, des atomes H^0 , des protons et des électrons, peut cependant être étudiée en détail grâce à l'emploi d'une technique de coïncidence.

Nous présenterons ainsi certaines particularités de l'émission électronique secondaire associée aux H^0 émergeant des cibles, concernant notamment les rendements mesurés pour des H^0 traversant la cible sans avoir perdu leur électron et pour des H^0 ayant subi au moins un échange de charge. Nous verrons aussi que l'électron perdu par le projectile incident ou encore la capture d'un électron par un proton près de la face de sortie ont des conséquences sur le rendement électronique de la face avant.

Nous avons adopté la convention de notation suivante: les indices B et F sont utilisés pour différencier les quantités mesurées aux angles arrière par rapport à la direction du faisceau (exemple: le rendement γ_B) des quantités mesurées aux angles avant (exemple: le rendement γ_F). Les projectiles incidents et émergents sont donnés entre parenthèses. Par exemple $\gamma_B(H^0, H^+)$ représente le rendement arrière d'une cible bombardée par un faisceau de H^0 et mesuré en coïncidence avec des H^+ émergents, et $b_B(H^+, H^+)$ représente le paramètre b de la loi de PÓLYA ajustant la distribution des électrons secondaires émis par la face arrière d'une cible, mesurée pour des protons incidents et émergents.

Nous appelons "*cible mince*" une cible de carbone évaporé d'épaisseur $d = 145 \text{ \AA}$, et "*cible épaisse*" une cible de carbone d'épaisseur $d = 1180 \text{ \AA}$. Ces deux cibles étant inclinées de 45° par rapport au faisceau incident, leurs épaisseurs inclinées sont donc $145 \times \sqrt{2} = 205 \text{ \AA}$ pour la cible mince, et $1180 \times \sqrt{2} = 1670 \text{ \AA}$ pour la cible épaisse.

3.1 Fraction de H^0 à l'émergence d'une cible mince

Lorsqu'une cible solide ou gazeuse est bombardée par un faisceau de protons ou d'atomes d'hydrogène, le faisceau émergent contient une fraction d'atomes d'hydrogène neutres. Au sein de la cible, les ions H^+ peuvent capturer des électrons, les atomes H^0 ont la possibilité de s'ioniser en produisant un proton et un électron de même vitesse. Ainsi, le faisceau émergent d'une cible est composé de trois types de projectiles : des protons, des atomes d'hydrogène ainsi que des électrons rapides, dans des proportions variables et dépendant de différents facteurs comme la vitesse initiale, l'épaisseur de la cible, et les fractions initiales de H^+ et de H^0 . Chacun de ces projectiles jouant un rôle différent dans les processus d'émission électronique secondaire, on comprend qu'il soit donc nécessaire de connaître la composition d'un tel faisceau.

Afin de quantifier les processus d'échanges de charge qui ont lieu dans la cible, nous utilisons les sections efficaces de perte et de capture électronique, notées respectivement σ_ℓ et σ_c . La détermination de ces sections efficaces permet d'évaluer la fraction de ces projectiles neutres à l'équilibre, notée $\phi_0(\infty)$, au moyen du simple rapport [6] :

$$\phi_0(\infty) = \frac{\sigma_c}{\sigma_c + \sigma_\ell} \quad (3.1)$$

Les quantités $\phi_0(x)$ et $\phi_1(x)$ représentant les fractions de H^0 et H^+ à une profondeur x dans la cible sont reliées par les relations :

$$d\phi_0(x) = -\phi_0(x)\sigma_\ell N dx + \phi_1(x)\sigma_c N dx \quad (3.2)$$

$$d\phi_1(x) = \phi_0(x)\sigma_\ell N dx - \phi_1(x)\sigma_c N dx \quad (3.3)$$

où N désigne le nombre d'atomes cibles par unité de volume, et qui conduisent à :

$$\phi_0(x) = \phi_0(\infty) + [\phi_0(0) - \phi_0(\infty)] e^{-N(\sigma_c + \sigma_\ell)x} \quad (3.4)$$

$$\phi_1(x) = (1 - \phi_0(\infty)) + [\phi_1(0) - (1 - \phi_0(\infty))] e^{-N(\sigma_c + \sigma_\ell)x} \quad (3.5)$$

où $\phi_0(0)$ et $\phi_1(0)$ sont les fractions initiales d'atomes H^0 et de protons incidents respectivement.

En utilisant un faisceau d'atomes d'hydrogène H^0 il est possible d'étudier cette fraction avant équilibre de charge [10]. La fraction d'atomes neutres $\phi_0(x)$ à une profondeur x dans la cible peut s'écrire :

$$\phi_0(x) = \phi_0(\infty) + (1 - \phi_0(\infty)) \exp(-Nx(\sigma_\ell + \sigma_c)) \quad (3.6)$$

Sachant que pour des protons d'énergie de l'ordre du MeV on a $\sigma_c \ll \sigma_\ell$, l'expression (3.6) se simplifie :

$$\boxed{\phi_0(x) \simeq \frac{\sigma_c}{\sigma_\ell} + e^{-\sigma_\ell Nx}} \quad (3.7)$$

Le premier terme de cette équation représente la fraction à l'équilibre ϕ_{0eq} des H^0 ayant subi au minimum une perte et une capture électronique. Nous les appellerons les H^0 reconstitués et les noterons H_r^0 . Le second terme correspond aux H^0 transmis à état de charge gelé, que nous noterons H_t^0 .

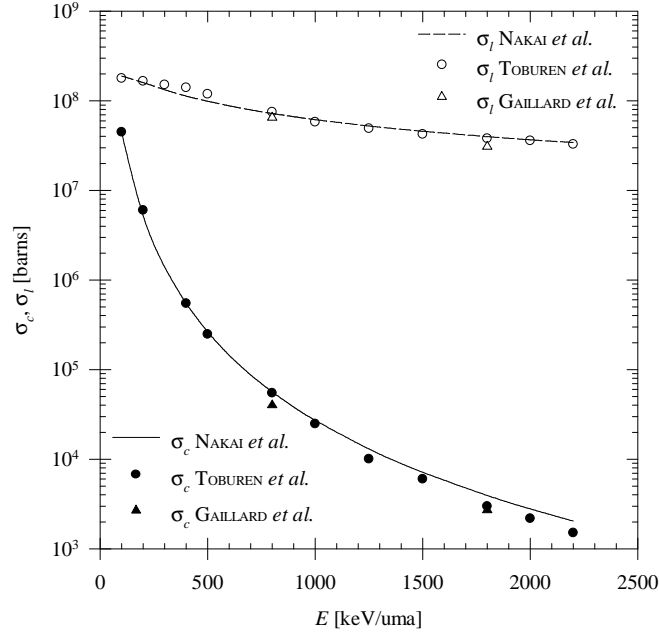


Figure 3.1 : Sections efficaces de perte électronique (σ_l) de H^0 et de capture électronique (σ_c) de H^+ dans du carbone en fonction de l'énergie incidente E . Les points représentent les données expérimentales de TOBUREN *et al.* [24] et de GAILLARD *et al.* [10], les courbes représentent les expressions analytiques de σ_l et σ_c déterminées par NAKAI *et al.* [18].

Expérimentalement, CHATEAU-THIERRY *et al.* [5] ont observé que dans différentes cibles solides dont le carbone, la fraction de neutres à l'équilibre décroît fortement avec l'énergie incidente. D'autre part, en utilisant des cibles minces de différentes épaisseurs (de 5 à 40 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$), ils ont également constaté que la fraction de projectiles neutres à l'équilibre était indépendante de l'épaisseur de la cible. L'équilibre de charge d'un faisceau de protons est donc atteint très rapidement, sur des profondeurs inférieures à 5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. TOBUREN *et al.* [24] donnent une détermination indirecte de σ_l et σ_c dans le carbone. Ces valeurs sont déduites de mesures des sections efficaces dans des cibles gazeuses d'hydrocarbures et d'oxyde de carbone en utilisant la loi d'additivité des sections efficaces sur chacun des composants de ces molécules. Pour des énergies incidentes supérieures à 300 keV/u, CROSS [6] a comparé la fraction de projectiles neutres déduite des sections efficaces de TOBUREN à la mesure donnée par CHATEAU-THIERRY [5]. Sa conclusion est que les processus de capture et de perte électronique peuvent être calculés pour une cible solide à partir des sections efficaces déterminées pour une cible gazeuse. Cependant, ceci n'est valable que pour des projectiles rapides pour lesquels les sections efficaces ne dépendent pas des niveaux de valence des électrons liés au solide. Les sections efficaces de capture et de perte électronique dont nous disposons, déduites d'expériences sur des cibles gazeuses et solides [24] [10] étant très proches, nous utiliserons donc leurs formulations analytiques, déterminées par NAKAI *et al.* [18] et représentées graphiquement sur la **figure 3.1**.

A partir des sections efficaces d'échange de charge il est possible de calculer la variation de la fraction de neutres pour un faisceau incident de H^0 en fonction du temps de passage t ($t = x/v$, v est

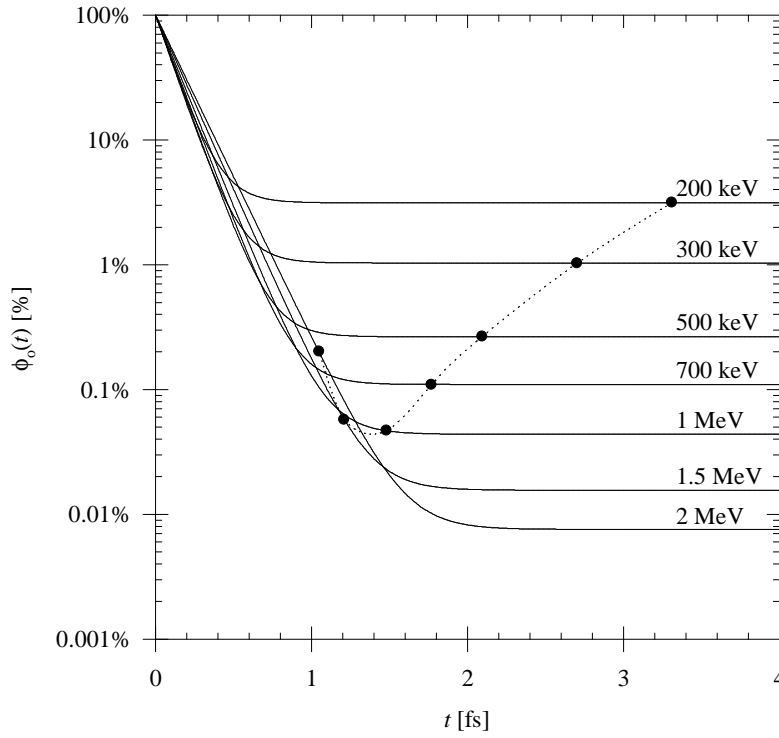


Figure 3.2 : Evolution de la fraction ϕ_0 de neutres d'un faisceau incident de H^0 en fonction du temps t de passage dans du carbone pour différentes énergies incidentes. Les points correspondent pour chaque énergie aux temps de passage dans la cible mince de carbone de 145 \AA (inclinée à 45° par rapport au faisceau incident) et représentent la fraction de neutres à la sortie de la cible. Les pointillés servent à guider le regard.

la vitesse incidente du projectile). Les résultats de ce calcul pour des faisceaux incidents de H^0 de différentes énergies sont montrés sur la **figure 3.2**. La fraction de neutres décroît exponentiellement pour les temps de passage courts et se stabilise à une valeur constante qui correspond à la fraction de neutres à l'équilibre de charge. La rapide décroissance de la section efficace de capture avec l'énergie incidente (cf. **figure 3.1**) se traduit par une fraction de neutres à l'équilibre qui diminue pour des énergies incidentes croissantes. Les points sur les différentes courbes $\phi_0(t)$ correspondent aux temps de passage des projectiles dans la cible mince de 145 \AA , calculés pour les énergies incidentes correspondantes. On constate que pour des énergies inférieures à 1 MeV le faisceau émergeant a atteint l'équilibre de charge dans la cible, alors que pour des énergies supérieures à 1 MeV le temps de passage dans la cible est trop court pour que l'équilibre de charge soit atteint. A ces énergies élevées l'augmentation de la fraction de neutre à l'émergence de la cible est due aux atomes H^0 incidents qui n'ont pas subi d'ionisation dans le solide et qui sont transmis à travers la cible.

Pour un faisceau de H^0 incidents d'énergie E , nous avons calculé les fractions de neutres reconstitués $\phi_{0r}(E, d)$ et à état de charge gelé $\phi_{0t}(E, d)$ à l'émergence de notre cible mince de carbone. Leur somme $\phi_0(E, d)$ est la fraction totale de neutre en sortie de cible mince. La fraction totale de neutres en sortie de cible épaisse ($d = 1180 \text{ \AA}$) est égale à la fraction de neutres à l'équilibre de charge. Les résultats sont montrés sur la **figure 3.3**, les valeurs pour les énergies incidentes que

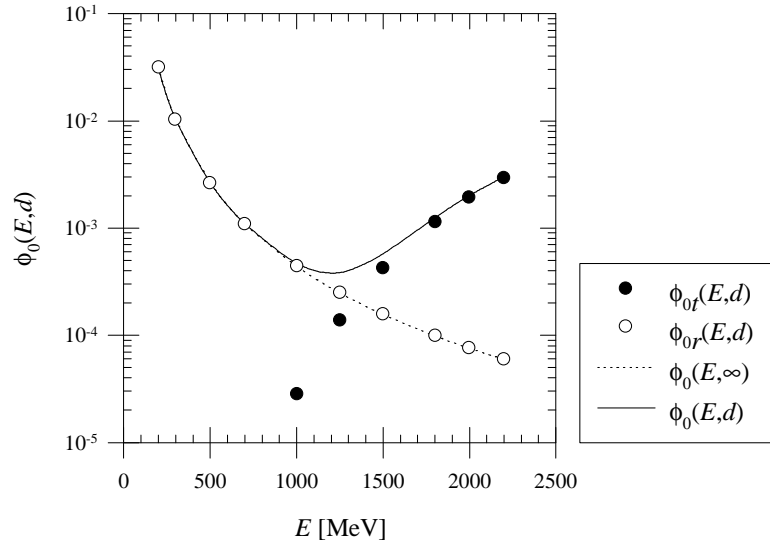


Figure 3.3 : Evolution de la fraction de neutres reconstitués $\phi_{0r}(E,d)$ et de neutres à état de charge gelé $\phi_{0f}(E,d)$ d'un faisceau de H^0 incident sur une cible mince de carbone d'épaisseur $d = 145 \text{ \AA}$, inclinée de 45° par rapport au faisceau, en fonction de l'énergie incidente E . La courbe en trait plein représente la fraction totale de neutres sortant de cette cible mince, tandis que la courbe en pointillés représente la fraction de neutres en sortie de la cible épaisse (1180 \AA) qui est égale à la fraction de neutres à l'équilibre de charge.

nous avons utilisées sont rassemblées dans le **tableau 3.1**. Dans ce tableau nous avons également donné les valeurs du libre parcours moyen λ_0 des atomes H^0 ($\lambda_0 = (N\sigma_\ell)^{-1}$) et le pourcentage d'atomes H^0 transmis dans le nombre total de neutres émergeant de la cible mince. On peut noter que pour des énergies incidentes supérieures à 1.25 MeV, qui correspondent à des libres parcours moyens de H^0 supérieurs à 20 \AA , la fraction d'atomes transmis n'est plus négligeable et représente plus de 95 % du faisceau de neutres émergents à partir de 2 MeV.

E [keV/uma]	λ_0 [Å]	$\phi_{or}(E, d)$	$\phi_{ot}(E, d)$	$\phi_0(E, d)$	$\alpha(E, d)$
270	8.4	$1.6 \cdot 10^{-2}$	$9.0 \cdot 10^{-9}$	$1.6 \cdot 10^{-2}$	0 %
500	11.8	$2.6 \cdot 10^{-3}$	$4.8 \cdot 10^{-8}$	$2.6 \cdot 10^{-3}$	0 %
750	15.5	$1.0 \cdot 10^{-3}$	$1.6 \cdot 10^{-6}$	$1.0 \cdot 10^{-3}$	0 %
1 000	19.0	$4.4 \cdot 10^{-4}$	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$4.7 \cdot 10^{-4}$	6 %
1 250	22.4	$2.5 \cdot 10^{-4}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$3.9 \cdot 10^{-4}$	36 %
1 500	25.6	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$4.2 \cdot 10^{-4}$	$5.8 \cdot 10^{-4}$	73 %
1 800	29.4	$9.9 \cdot 10^{-5}$	$1.1 \cdot 10^{-3}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$	92 %
2 000	31.9	$7.6 \cdot 10^{-5}$	$1.9 \cdot 10^{-3}$	$2.0 \cdot 10^{-3}$	96 %
2 200	34.2	$5.9 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-3}$	$3.0 \cdot 10^{-3}$	98 %

Tableau 3.1 : Cas d'une cible mince de carbone évaporé d'épaisseur $d = 145$ Å inclinée de 45° par rapport à un faisceau incident d'atomes d'hydrogène neutres d'énergie incidente E : évolution du libre parcours moyen λ_0 d'un H^0 , de la fraction reconstituée ϕ_{or} de H^0 , de la fraction de neutres à état de charge gelé ϕ_{ot} ainsi que de la fraction totale de neutres ϕ_0 en sortie de cible. La dernière colonne représente le pourcentage α de H^0 à état de charge gelé par rapport au nombre total des H^0 émergent de la cible.

3.2 Emission électronique associée aux protons émergents

Nous allons présenter tout d'abord les résultats de l'émission électronique secondaire mesurée en coïncidence avec les protons émergent des cibles de carbone pour des faisceaux incidents de H^0 et de protons. La fraction de neutres dans le faisceau émergent est très faible en raison de la valeur élevée de la section efficace de perte électronique σ_ℓ comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent. Après traversée des cibles, la fraction de projectiles neutres la plus élevée dans nos expériences était de 1.6 % seulement (cf. **tableau 3.1 p. 74**) et correspondait à la composition du faisceau émergent de plus basse énergie (270 keV/uma). Dans ces conditions expérimentales, on peut donc considérer que les rendements électroniques mesurés en coïncidence avec tous les états de charge émergents sont caractéristiques des protons de sortie. Des spectres expérimentaux caractéristiques de l'émission arrière induite par des atomes H^0 de différentes énergies et les distributions électroniques des électrons émis correspondantes sont montrés sur la **figure 3.4**.

3.2.1 Emission électronique arrière

La **figure 3.5** montre l'évolution des rendements électroniques mesurés avec la cible mince et la cible épaisse en fonction de l'énergie incidente. Les rendements électroniques $\gamma_B(H^0, H^+)$ et $\gamma_B(H^+, H^+)$ pour des atomes H^0 incidents et des protons incidents correspondent à des mesures réalisées en coïncidence avec les protons émergents.

L'indépendance de $\gamma_B(H^+, H^+)$ vis-à-vis de l'épaisseur de la cible indique que la profondeur moyenne d'échappement des électrons λ_{se} est inférieure à l'épaisseur de la cible la plus mince, donc inférieure à 145 Å.

D'autre part, nous avons aussi vérifié la relation de proportionnalité entre le rendement électronique induit par des protons et la perte d'énergie des protons incidents $S_e(H^+)$. Les valeurs utilisées

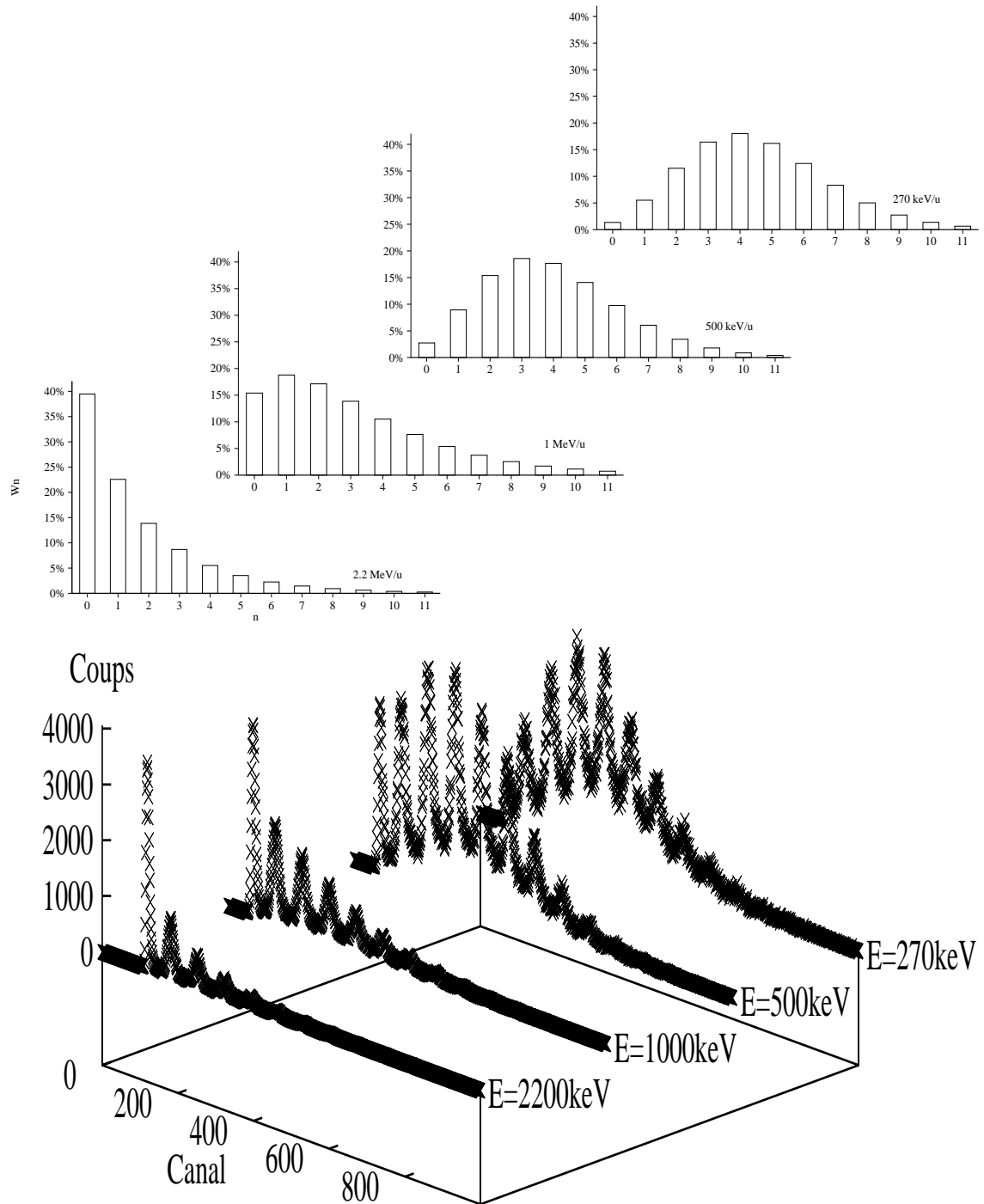


Figure 3.4 : Exemples de spectres de l'émission électronique secondaire arrière induite par des atomes H^0 de différentes énergies et distributions statistiques des électrons émis correspondantes.

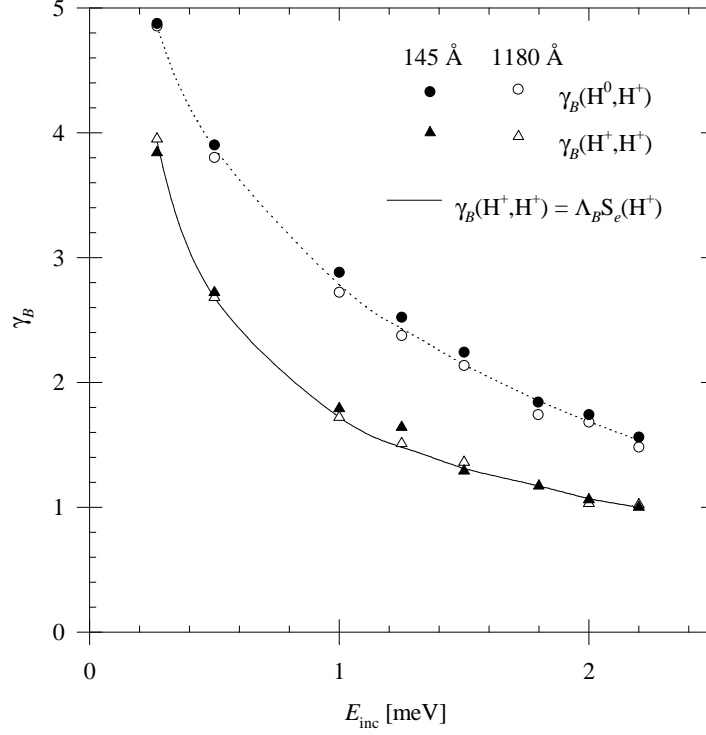


Figure 3.5 : Rendements arrière $\gamma_B(H^+, H^+)$ et $\gamma_B(H^0, H^+)$ obtenus en fonction de l'énergie incidente E pour les cibles mince et épaisse avec des protons et des atomes d'hydrogène incidents, en coïncidence avec des protons émergents, et comparaison avec le pouvoir d'arrêt du carbone.

pour la perte d'énergie sont celles données par ANDERSEN *et al.* [1] :

$$\gamma_B(H^+, H^+) = \Lambda_B S_e(H^+) \quad (3.8)$$

La valeur du paramètre Λ_B ainsi déterminée est compatible avec de précédentes déterminations :

$$\Lambda_B = 0.44 \pm 0.02 \text{ Å/eV} \quad (3.9)$$

Dans le cas de projectiles incidents neutres, les rendements électroniques $\gamma_B(H^0, H^+)$ sont également indépendants de l'épaisseur des cibles, ce qui est en accord avec la faible valeur du libre parcours moyen λ_0 des H^0 dans le carbone, qui varie de 8 Å à 270 keV jusqu'à 34 Å à 2.2 MeV (cf. **tableau 3.1**).

Les rendements électroniques induits par des H^0 plus élevés que ceux induits par des protons peuvent s'expliquer par le fait que les électrons du projectile perdus lors de l'ionisation du H^0 contribuent au rendement arrière par l'émission électronique qu'ils engendrent, et aussi par leur taux de rétrodiffusion [4]. On peut se demander si l'émission électronique produite par H^0 n'est pas tout simplement la somme des contributions d'un proton et d'un électron indépendants. En utilisant les distributions électroniques d'un proton $\{W_n(H^+)\}$ et d'un H^0 $\{W_n(H^0)\}$, on devrait si c'est le cas trouver la distribution de l'électron incident $\{W_n(e^-)\}$ par simple déconvolution [3] :

$$W_n(e^-) = \frac{W_n(H^0) - \sum_{i=1}^n W_i(H^+) W_{n-i}(e^-)}{W_0(H^+)} \quad (3.10)$$

avec pour premier terme :

$$W_0(e^-) = \frac{W_0(H^0)}{W_0(H^+)} \quad (3.11)$$

Cette procédure conduit à un échec total car dès le second terme nous trouvons $W_1(e^-) < 0$ pour toutes les énergies incidentes, sans que cela soit imputable à un manque de statistique des spectres. Donc l'émission électronique secondaire arrière des H^0 ne résulte pas des interactions indépendantes d'un proton et d'un électron. Cette première observation montre que l'écrantage mutuel de la charge du proton et de l'électron lié du H^0 avant ionisation doit être pris en compte dans l'estimation des différentes interactions avec les électrons des cibles.

Profondeur d'échappement des électrons secondaires

La comparaison de l'émission électronique secondaire arrière induite par des H^+ et des H^0 permet d'estimer la valeur de la profondeur moyenne d'échappement λ_{se} des électrons secondaires, introduite par STERNGLASS dans son modèle semi-empirique [23]. L'estimation de λ_{se} est importante car elle donne l'ordre de grandeur de la profondeur sur laquelle l'état de charge du projectile incident doit être considéré en détail. Comme cela est généralement admis, nous avons considéré que λ_{se} est une grandeur indépendante du projectile ainsi que de sa vitesse, au même titre que la distribution en énergie des électrons secondaires. Nous avons utilisé pour nos calculs les valeurs expérimentales de l'émission électronique arrière de la cible épaisse (1180 Å inclinée à 45°) soumise à un faisceau de H^0 incident et à un faisceau de protons.

Dans le domaine de vitesse de notre étude, la section efficace de perte électronique σ_ℓ étant très supérieure à la section efficace de capture σ_c , le processus de capture sur la profondeur λ_{se} a été négligé.

Le nombre d'électrons secondaires émis par un H^0 incident dépend de la profondeur x à laquelle il a été ionisé. Avant ionisation, il semble raisonnable de penser que son taux d'émission secondaire est petit devant celui d'un proton, car la participation de l'électron incident se limite à l'écrantage du H^+ , et limite donc les collisions proton-électron aux petits paramètres d'impact. Après ionisation, on peut aussi faire l'hypothèse que les constituants du H^0 contribuent de façon indépendante à la production d'électrons. A partir de cela, nous pouvons calculer la dépendance du rapport $\gamma_m(H^0)/\gamma(H^+)$ en fonction de la vitesse ($\gamma_m(H^0)$ est le rendement électronique mesuré) comme cela a déjà été fait par GHOSH et KHARE [11].

Le nombre d'électrons secondaires dûs à un projectile donné et provenant d'une profondeur comprise entre x et $x + dx$ (la cible étant inclinée de 45°) s'écrit :

$$d\gamma = \frac{\gamma}{\sqrt{2}\lambda_{se}} e^{-x/\sqrt{2}\lambda_{se}} dx \quad (3.12)$$

où $\exp(-x/\sqrt{2}\lambda_{se})$ représente l'atténuation de la probabilité d'échappement des électrons secondaires. L'intégration de la quantité $d\gamma$ sur l'épaisseur d de la cible (avec $d \gg \lambda_{se}$) donne le rendement total γ :

$$\int_0^{d \gg \lambda_{se}} d\gamma = \gamma \quad (3.13)$$

Dans le cas d'un H^0 incident, la grandeur $d\gamma_m(H^0)$ représentant le nombre d'électrons provenant de la tranche $[x, x + dx]$ peut être écrite comme la somme des contributions d'un H^0 à état de charge gelé $d\gamma(H^0)$, ainsi que des contributions respectives d'un proton $d\gamma(H^+)$ et d'un électron $d\gamma(e^-)$, chacun de ces termes étant pondéré par la fraction de neutres et de projectiles ionisés à la profondeur x considérée :

$$d\gamma_m(H^0) = \phi_0(x) d\gamma(H^0) + [1 - \phi_0(x)] d\gamma(H^+) + [1 - \phi_0(x)] d\gamma(e^-) \quad (3.14)$$

La fraction d'hydrogène neutre $\phi_0(x)$ à une profondeur x est donnée par $\phi_0(x) = \exp(-x/\lambda_0)$ (on suppose que $\phi_0(\infty) \equiv 0$) où λ_0 est le libre parcours moyen du H^0 dans le carbone. Les termes $d\gamma(H^0)$ et $d\gamma(H^+)$ peuvent être calculés à partir de l'équation (3.12). A ce point, il est important de signaler que le rendement intégré $\gamma(e^-)$ est non seulement dû aux électrons secondaires produits par l'électron incident, mais aussi à la rétrodiffusion des électrons incidents sur les atomes de la cible. Sa forme différentielle peut s'écrire :

$$d\gamma(e^-) = d\gamma'(e^-) + \varepsilon(x) dx \quad (3.15)$$

où $d\gamma'(e^-)$ représente les vrais électrons secondaires, et $\varepsilon(x) dx$ la fraction de rétrodiffusés. Alors que $d\gamma'(e^-)$ est donné par l'équation (3.12), la fonction $\varepsilon(x)$ n'a pas d'expression analytique, mais son intégrale de zéro à l'infini, $\eta(e^-)$, représentant la fraction rétrodiffusée pour une cible épaisse, a été mesurée par HÖLZL et JACOBI [12] :

$$\eta(e^-) = \int_0^\infty \varepsilon(x) dx \quad (3.16)$$

Dans la suite, nous supposons que $\eta(e^-)$ est le même quel que soit l'endroit où l'électron est perdu par le projectile, les parcours des électrons rétrodiffusés étant très supérieurs à λ_0 . Le rendement mesuré $\gamma_m(H^0)$ peut alors être calculé en intégrant l'équation (3.14) sur l'épaisseur de la cible (très supérieure à λ_{se} et λ_0) :

$$\begin{aligned} d\gamma_m(H^0) = & \overbrace{e^{-x/\lambda_0} \frac{\gamma(H^0)}{\sqrt{2}\lambda_{se}} e^{-x/\sqrt{2}\lambda_{se}} dx}^{(3.17.1)} + \overbrace{(1 - e^{-x/\lambda_0}) \frac{\gamma(H^+)}{\sqrt{2}\lambda_{se}} e^{-x/\sqrt{2}\lambda_{se}} dx}^{(3.17.2)} + \\ & \underbrace{(1 - e^{-x/\lambda_0}) \left[\frac{\gamma(e^-)}{\sqrt{2}\lambda_{se}} e^{-x/\sqrt{2}\lambda_{se}} + \varepsilon(x) \right] dx}_{(3.17.3)} \end{aligned} \quad (3.17)$$

où les termes (3.17.1), (3.17.2) et (3.17.3) représentent les contributions au rendement de l'atome H^0 , du proton et de l'électron, respectivement. L'intégration de ces termes sur l'épaisseur d de la cible donne :

$$\int_0^d (3.17.1) dx = \gamma(H^0) \frac{\lambda_0}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} \left[1 - \exp\left(-\frac{d}{2} \frac{2\lambda_{se} + \sqrt{2}\lambda_0}{\lambda_0\lambda_{se}}\right) \right] \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned} \int_0^d (3.17.2) dx = & \gamma(H^+) \frac{1}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} \left[\lambda_0 \exp\left(-\frac{d}{2} \frac{2\lambda_{se} + \sqrt{2}\lambda_0}{\lambda_0\lambda_{se}}\right) - (\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0) \times \right. \\ & \left. \exp\left(-\frac{d}{\sqrt{2}\lambda_{se}}\right) + \sqrt{2}\lambda_{se} \right] \end{aligned} \quad (3.19)$$

$$\int_0^d (\mathbf{3.17.3}) dx = \gamma(e^-) \frac{1}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} \left[\lambda_0 \exp\left(-\frac{d}{2} \frac{2\lambda_{se} + \sqrt{2}\lambda_0}{\lambda_0\lambda_{se}}\right) - (\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0) \times \right. \\ \left. \exp\left(-\frac{d}{\sqrt{2}\lambda_{se}}\right) + \sqrt{2}\lambda_{se} \right] + \int_0^d (1 - e^{-x/\lambda_0}) \varepsilon(x) dx \quad (3.20)$$

et la condition $d \gg \lambda_{se} > \lambda_0$ est équivalente à :

$$\lim_{d \rightarrow \infty} (\mathbf{3.18}) = \gamma(H^0) \frac{\lambda_0}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} \quad (3.21)$$

$$\lim_{d \rightarrow \infty} (\mathbf{3.19}) = \gamma(H^+) \frac{\sqrt{2}\lambda_{se}}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} \quad (3.22)$$

$$\lim_{d \rightarrow \infty} (\mathbf{3.20}) = \gamma(e^-) \frac{\sqrt{2}\lambda_{se}}{\sqrt{2}\lambda_{se} + \lambda_0} + \eta(e^-) \quad (3.23)$$

en supposant que :

$$\int_0^d (1 - e^{-x/\lambda_0}) \varepsilon(x) dx \simeq \eta(e^-) \quad (3.24)$$

Le résultat $\gamma_m(H^0)$ a donc pour expression :

$$\gamma_m(H^0) = \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}} \gamma(H^0) + \left(1 - \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}}\right) (\gamma'(e^-) + \gamma(H^+)) + \eta(e^-) \quad (3.25)$$

On peut encore l'écrire en unités de $\gamma(H^+)$:

$$\frac{\gamma_m(H^0)}{\gamma(H^+)} = \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}} \frac{\gamma(H^0)}{\gamma(H^+)} + \left(1 - \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}}\right) \left(1 + \frac{\gamma'(e^-)}{\gamma(H^+)}\right) + \frac{\eta(e^-)}{\gamma(H^+)} \quad (3.26)$$

Afin de calculer le rapport $\gamma(H^0)/\gamma(H^+)$ nous avons supposé que le rendement électronique par un projectile à état de charge gelé est proportionnel à la perte d'énergie : $\gamma(H^+) = \Lambda S_e(H^+)$ et $\gamma(H^0) = \Lambda S_e(H^0)$, où Λ (constante dépendant de la cible) est identique pour les deux projectiles. Le rapport $\gamma(H^0)/\gamma(H^+)$ varie donc avec la vitesse comme $S_e(H^0)/S_e(H^+)$, $S_e(H^0)$ étant calculé à partir de la formule de KANEKO [14] (**formule (1.8) p. 9**). De la même façon, le rapport $\gamma'(e^-)/\gamma(H^+)$ peut être évalué à l'aide des formules du pouvoir d'arrêt de BETHE-BLOCH (**équations (1.3) p. 7 et (1.6) p. 8**). Le rapport $\gamma'(e^-)/\gamma(H^+)$ calculé varie de 0.25 à 0.2 MeV/u jusqu'à une valeur de saturation de 0.7 à 2.0 MeV/u. Ce calcul est en bon accord avec le résultat obtenu en utilisant les valeurs de $\gamma'(e^-)$ mesurées dans [12] et nos valeurs expérimentales de $\gamma(H^+)$. Finalement, l'**expression (3.26)** peut s'écrire :

$$\boxed{\frac{\gamma_m(H^0)}{\gamma(H^+)} = \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}} \frac{S_e(H^0)}{S_e(H^+)} + \left(1 - \frac{\lambda_0}{\lambda_0 + \sqrt{2}\lambda_{se}}\right) \left(1 + \frac{S_e(e^-)}{S_e(H^+)}\right) + \frac{\eta(e^-)}{\gamma(H^+)}} \quad (3.27)$$

La fraction $\eta(e^-)$ donnée dans la **référence [12]** est quasi-constante et égale à 0.18 (après correction de notre angle d'incidence) sur l'intervalle d'énergie de nos expériences.

Les résultats de nos calculs pour des valeurs de λ_{se} de 30, 100 et 200 Å, et l'infini, respectivement, sont montrés sur la **figure 3.6** ainsi que nos valeurs expérimentales du rapport $\gamma_m(H^0)/\gamma(H^+)$. Le meilleur accord est obtenu pour $\lambda_{se} = 100$ Å. Il est aussi indéniable d'après la **figure 3.6** que le rapport $\gamma_m(H^0)/\gamma(H^+)$ dépend faiblement de λ_{se} pour des valeurs de λ_{se} très supérieures à λ_0 .

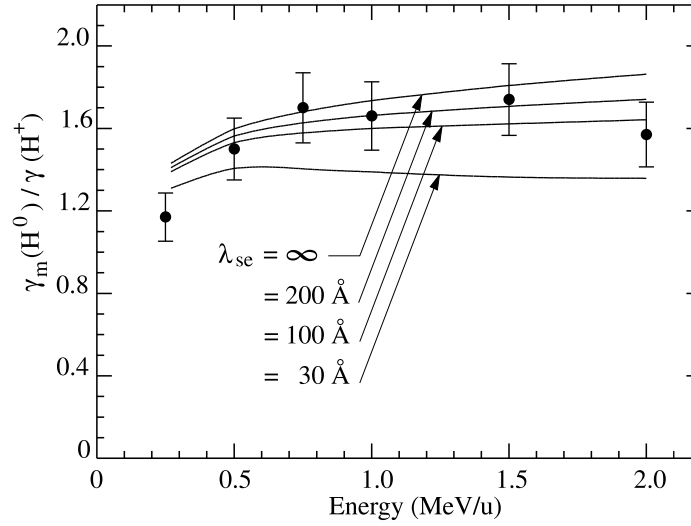


Figure 3.6 : Comparaison des rapports arrière expérimentaux et calculés $\gamma_m(H^0)/\gamma(H^+)$ en fonction de l'énergie incidente.

La valeur limite de $\gamma_m(H^0)$ est $[\gamma(e^-) + \gamma(H^+)]$, somme des deux rendements pour des protons et des électrons indépendants. Pour cette raison λ_{se} ne peut pas être déterminé de façon très précise. Toutefois, cette valeur est de l'ordre de grandeur de celle utilisée par GHOSH et KHARE pour ajuster leurs données expérimentales [11] et correspond aussi à celle qui est rapportée dans la littérature concernant la microscopie électronique [20, p. 145]. Elle est par contre largement supérieure aux valeurs couramment utilisées qui avaient été proposées par STERNGLASS ($\approx 20 \text{ \AA}$) [23], et qui correspondent plutôt aux libres parcours moyens inélastiques des électrons secondaires.

Il en résulte que le rendement électronique arrière dû à des H^0 incidents est inférieur à la somme des rendements d'un électron et d'un proton indépendants, car la plus grande part de la production électronique démarre seulement à la profondeur moyenne λ_0 . En effet, la contribution des atomes H^0 à état de charge gelé reste limitée en raison de la faible valeur de leur libre parcours moyen λ_0 par rapport à celle de la profondeur d'échappement λ_{se} .

Distribution statistique

Nous avons vu dans le chapitre consacré à la description du dispositif expérimental et à l'analyse des données (cf. chapitre 2 p. 41) que l'accord entre nos distributions expérimentales et la loi de PÓLYA était très bon. La figure 3.7 représente la variation en fonction de l'énergie des valeurs expérimentales, $b_B(H^+, H^+)$ et $b_B(H^0, H^+)$, du paramètre b des distributions de PÓLYA ajustant les distributions statistiques expérimentales des électrons émis à l'arrière des cibles pour des protons et des atomes H^0 incidents. On observe que les valeurs $b_B(H^0, H^+)$ sont plus grandes que les valeurs de $b_B(H^+, H^+)$ et que pour chaque projectile, b croît linéairement avec l'énergie incidente. Cela est en accord avec l'idée déjà évoquée dans le chapitre 1, que ce paramètre b des distributions doit être relié à la distribution des transferts d'énergie δE des collisions successives projectile-électron plutôt qu'au dépôt moyen d'énergie ΔE sur la profondeur d'échappement des électrons. En effet

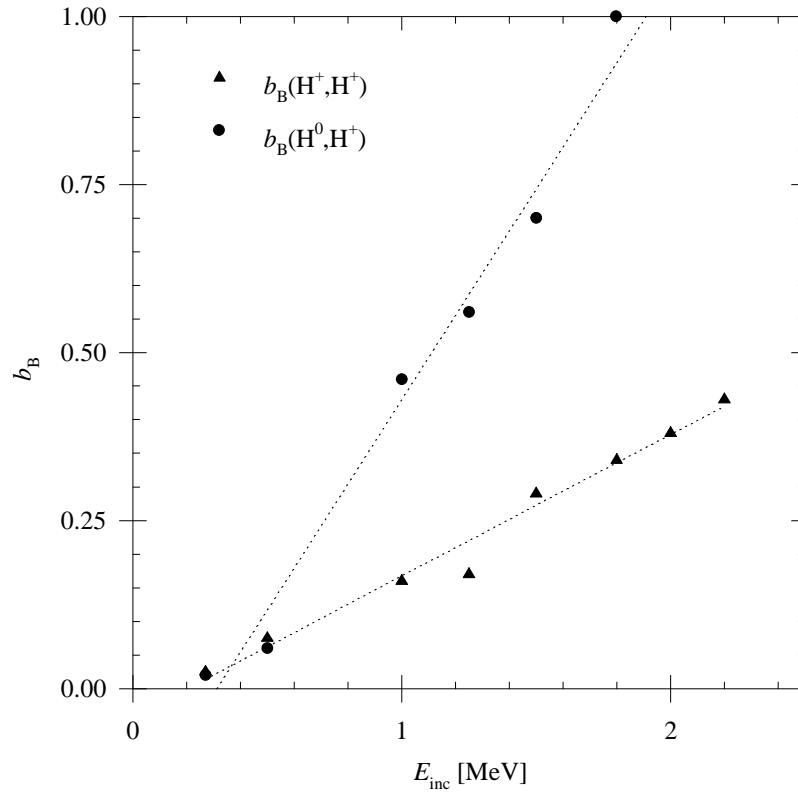


Figure 3.7 : Variation, en fonction de l'énergie incidente des projectiles du paramètre $b_B(\text{H}^+, \text{H}^+)$ et $b_B(\text{H}^0, \text{H}^+)$ des distributions de PÓLYA correspondant aux distributions statistiques expérimentales de l'émission électronique arrière pour des protons et des H^0 incidents.

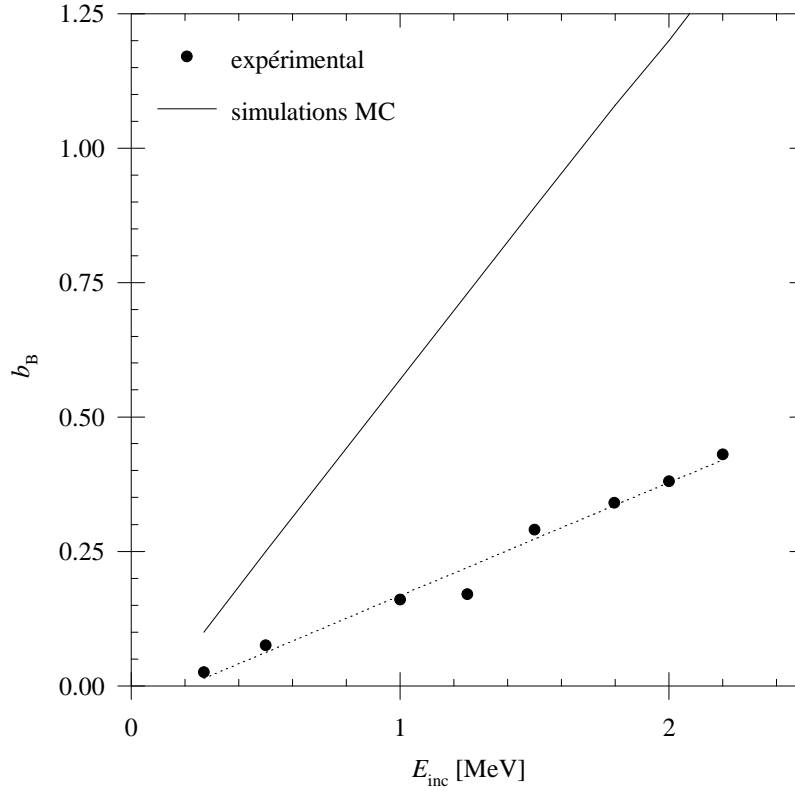


Figure 3.8 : Comparaison entre les valeurs expérimentales $b_B(H^+, H^+)$ des distributions de PÓLYA et les valeurs issues des simulations Monte-Carlo de A. DUBUS [8].

le dépôt d'énergie ΔE est plus faible pour des atomes incidents que pour des protons en accord avec une perte d'énergie plus faible pour un neutre que pour un proton. De plus il diminue avec l'énergie incidente en accord également avec la diminution de la perte d'énergie électronique avec l'énergie. Par contre le transfert d'énergie δE à un électron du solide dans une collision binaire varie proportionnellement avec l'énergie incidente. Par exemple à 2.0 MeV, le dépôt d'énergie moyen d'un proton sur 100 Å est $\Delta E = 240$ eV, alors que le transfert maximal d'énergie dans une collision binaire est $\delta E_{max} = 4.4$ keV. On est donc dans le cas où une seule collision peut produire un grand nombre d'électrons. Cela se traduit par des distributions des électrons émis qui s'écartent de plus en plus d'une distribution de POISSON quand l'énergie incidente augmente.

Dans le cas des protons incidents nous avons pu faire une comparaison de nos mesures avec des résultats de simulation Monte Carlo réalisées par DUBUS [8] et correspondant à nos conditions expérimentales. Les paramètres b des distributions de PÓLYA issus des simulations sont comparés dans la **figure 3.8** aux paramètres de nos distributions expérimentales. Les résultats des simulations montrent comme les résultats expérimentaux l'augmentation de b avec l'énergie incidente. Cependant, les valeurs obtenues dans les simulations sont plus grandes que les valeurs expérimentales. Cet écart peut être attribué au fait que les interactions avec les électrons de valence sont décrites dans les simulations à partir de la fonction diélectrique de LINDHARD qui s'applique dans le cas des métaux. Il semble que les valeurs issues des simulations sont plus proches des valeurs mesurées avec des cibles d'aluminium [2] que des valeurs que nous avons obtenues avec les cibles de carbone. Il

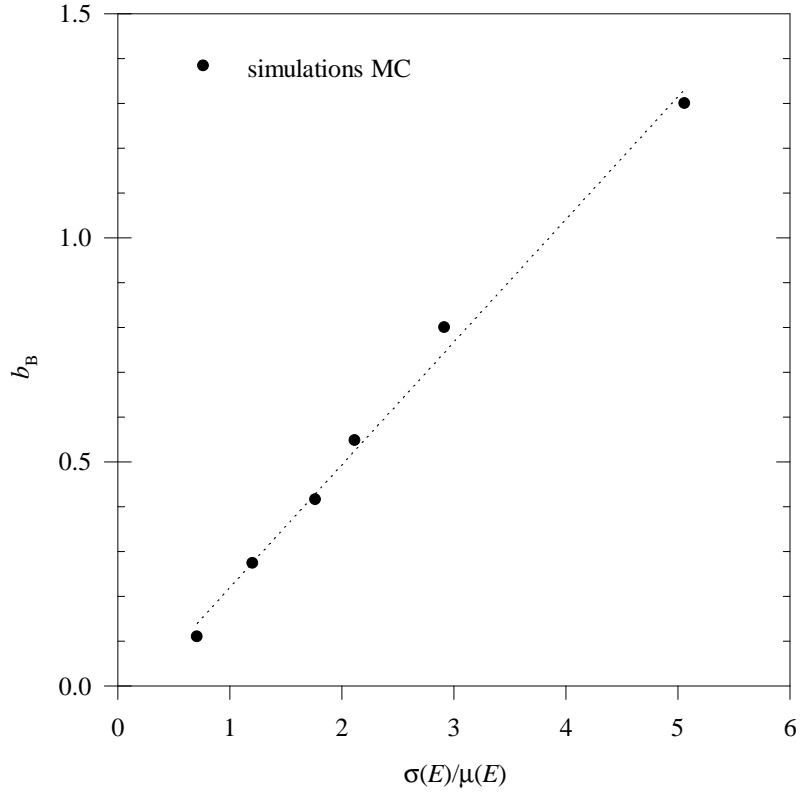


Figure 3.9 : *Corrélation entre le paramètre b de PÓLYA issu de simulations Monte Carlo et l'écart-type relatif $\sigma(E)/\mu(E)$ du dépôt d'énergie des protons dans les 30 premiers angströms d'une cible de carbone [8].*

est probable qu'une modélisation du carbone amorphe basée sur des données optiques conduirait à un meilleur accord entre simulation et expérience.

Les résultats de ces simulations montrent par contre que le nombre d'électrons émis est corrélé à l'énergie déposée par un proton dans les 30 premiers angströms de la cible, et ceci pour toutes les énergies incidentes entre 0.25 et 1.5 MeV. Une autre corrélation intéressante est obtenue entre le paramètre b de PÓLYA et la dispersion du dépôt d'énergie dans ces 30 Å. En appelant $\mu(E)$ le dépôt d'énergie moyen d'un proton d'énergie E et $\sigma(E)$ son écart type, la dispersion du dépôt d'énergie s'exprime par l'écart type relatif $\sigma(E)/\mu(E)$. La **figure 3.9** montre la corrélation obtenue entre les paramètre b de PÓLYA et l'écart type relatif du dépôt d'énergie.

Ces résultats des simulations confirment bien l'idée que le paramètre b des distributions de PÓLYA est relié à la distribution des transferts d'énergie dans les interactions successives de l'ion incident sur la profondeur moyenne d'échappement des électrons, alors que le nombre moyen d'électrons émis est fonction du dépôt moyen d'énergie sur cette profondeur d'échappement.

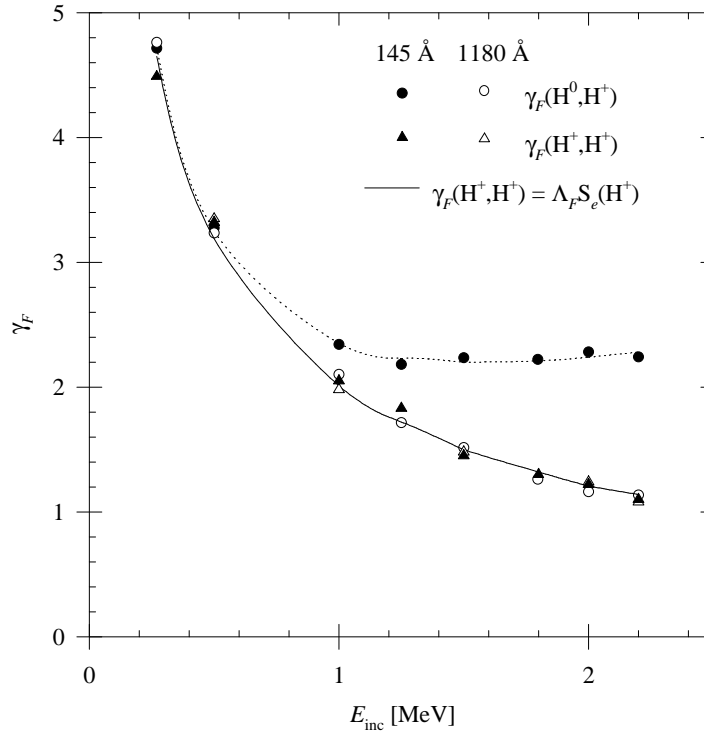


Figure 3.10 : Rendements avant $\gamma_F(H^+, H^+)$ et $\gamma_F(H^0, H^+)$ des cibles de carbone des protons et des atomes d'hydrogène incidents. Les rendements sont mesurés en coïncidence avec les protons émergents. La courbe en trait plein est la courbe du pouvoir d'arrêt pour les protons ajustée aux rendements $\gamma_F(H^+, H^+)$.

3.2.2 Emission électronique avant

Rendement électronique avant

La dépendance en énergie du rendement avant $\gamma_F(H^+, H^+)$ et $\gamma_F(H^0, H^+)$ est montrée sur la **figure 3.10**. Pour des protons incidents, le rendement $\gamma_F(H^+, H^+)$ est identique pour les deux épaisseurs de cibles. La courbe en trait plein sur la **figure 3.10** est le résultat de l'ajustement de $\gamma_F(H^+, H^+)$ par la perte d'énergie du proton dans le carbone ($\gamma_F(H^+, H^+) = \Lambda_F S_e$) et la valeur du coefficient Λ_F est $\Lambda_F = 0.49 \pm 0.02$ Å/eV.

Pour des atomes H^0 incidents, les rendements avant $\gamma_F(H^0, H^+)$ de la cible épaisse sont identiques au rendement avant des protons incidents $\gamma_F(H^+, H^+)$ et suivent donc en fonction de l'énergie la courbe de la perte d'énergie des protons. Par contre les rendements avant $\gamma_F(H^0, H^+)$ de la cible mince dévient nettement de cette courbe pour des énergies supérieures à 1 MeV. L'augmentation observée du rendement électronique de la cible mince provient de la contribution à l'émission électronique de l'électron du projectile libéré lors de l'ionisation de H^0 et dont la vitesse est sensiblement la même que celle du proton résultant. Cet effet de l'électron du projectile a déjà été rapporté par KRONEBERGER *et al.* [16] dans une étude de l'émission électronique induite par des atomes H^0 de 1.2 MeV dans des cibles minces de carbone. L'augmentation du rendement électronique avant était observée pour des cibles d'épaisseur inférieure à $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Dans cette étude les résultats sont présentés sous la forme du rapport $\gamma_F(H^0, H^+)/\gamma_F(H^+, H^+)$. A partir des rendements que nous avons

mesurés à 1.25 MeV avec la cible mince, qui correspond en raison de son inclinaison à 45° à une épaisseur équivalente de $3.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$, nous obtenons un rapport $\gamma_F(\text{H}^0, \text{H}^+)/\gamma_F(\text{H}^+, \text{H}^+)$ de 1.25. La valeur interpolée sur la courbe de variation de $\gamma_F(\text{H}^0, \text{H}^+)/\gamma_F(\text{H}^+, \text{H}^+)$ en fonction de l'épaisseur des cibles de la **référence** [16] est environ 1.35. Nos résultats sont donc en accord avec ceux de cette étude antérieure de KRONEBERGER *et al.*

Quand ils pénètrent dans la cible, les H^0 incidents perdent leur électron très rapidement en raison de leur libre parcours moyen très court : par exemple pour une énergie incidente de 2 MeV, ($\lambda_0 \simeq 34 \text{ \AA}$) 80 % des H^0 incidents ont perdu leur électron à une profondeur de 50 \AA . Ces électrons ont ensuite un parcours chaotique dans la cible en raison des grandes déflexions angulaires qu'ils peuvent subir lors des collisions élastiques avec les atomes de la cible, mais leur probabilité de traverser la cible est non négligeable entre 1 et 2.2 MeV, car leur parcours devient supérieur à l'épaisseur de la cible [13] [17].

Contribution des électrons perdus des projectiles H^0

Quand un électron de projectile quitte la cible, le nombre total d'électrons détectés en coïncidence avec le proton inclut les électrons secondaires produits par le proton émergent et par l'électron projectile émergent et l'électron projectile lui-même. Bien que l'électron projectile soit indiscernable des électrons secondaires qu'il a produit, nous conviendrons de dire que l'électron projectile est toujours inclus dans sa propre production d'électrons sortant de la cible. Le rendement électronique avant peut s'écrire :

$$\gamma_F(\text{H}^0, \text{H}^+) = \gamma_F(\text{H}^+, \text{H}^+) + T_e \gamma_F(e_{proj}^-) \quad (3.28)$$

où T_e est la fraction des électrons de projectile transmis, et $\gamma_F(e_{proj}^-)$ le nombre moyen d'électrons émis par électron du projectile transmis. Le rendement $\gamma_F(e_{proj}^-)$ comprend l'électron projectile et le nombre moyen d'électrons de cascade $\gamma_F^{se}(e_{proj}^-)$ qu'il a produits ($\gamma_F(e_{proj}^-) = 1 + \gamma_F^{se}(e_{proj}^-)$).

Nous pouvons déduire les valeurs de T_e et $\gamma_F^{se}(e_{proj}^-)$ des distributions statistiques d'émission électronique secondaire avant mesurées pour des H^0 et des protons incidents. L'électron et le proton peuvent raisonnablement être considérés comme deux projectiles indépendants quand ils arrivent près de la face de sortie de la cible. Alors la distribution mesurée $\{W_{nF}(\text{H}^0, \text{H}^+)\}$ peut être exprimée comme la convolution de celle d'un proton $\{W_{nF}(\text{H}^+, \text{H}^+)\}$ par celle d'un électron $\{W'_{nF}(e_{proj}^-)\}$. Celle-ci peut être calculée à partir des relations suivantes :

$$W'_{nF}(e_{proj}^-) = \frac{W_{nF}(\text{H}^0, \text{H}^+) - \sum_{i=1}^n W_{iF}(\text{H}^+, \text{H}^+) W'_{(n-i)F}(e_{proj}^-)}{W_{0F}(\text{H}^+, \text{H}^+)} \quad (3.29)$$

avec pour premier terme :

$$W'_{0F}(e_{proj}^-) = \frac{W_{0F}(\text{H}^0, \text{H}^+)}{W_{0F}(\text{H}^+, \text{H}^+)} \quad (3.30)$$

La **figure 3.11** montre le résultat du calcul de $\{W'_{nF}(e_{proj}^-)\}$ à partir des distributions expérimentales $\{W_{nF}(\text{H}^0, \text{H}^+)\}$, $\{W_{nF}(\text{H}^+, \text{H}^+)\}$ dans le cas de projectiles incidents de 2.2 MeV traversant la cible mince. Le premier terme de la distribution $\{W'_{nF}(e_{proj}^-)\}$ pour $n = 0$, soit $W'_{0F}(e_{proj}^-)$, représente la

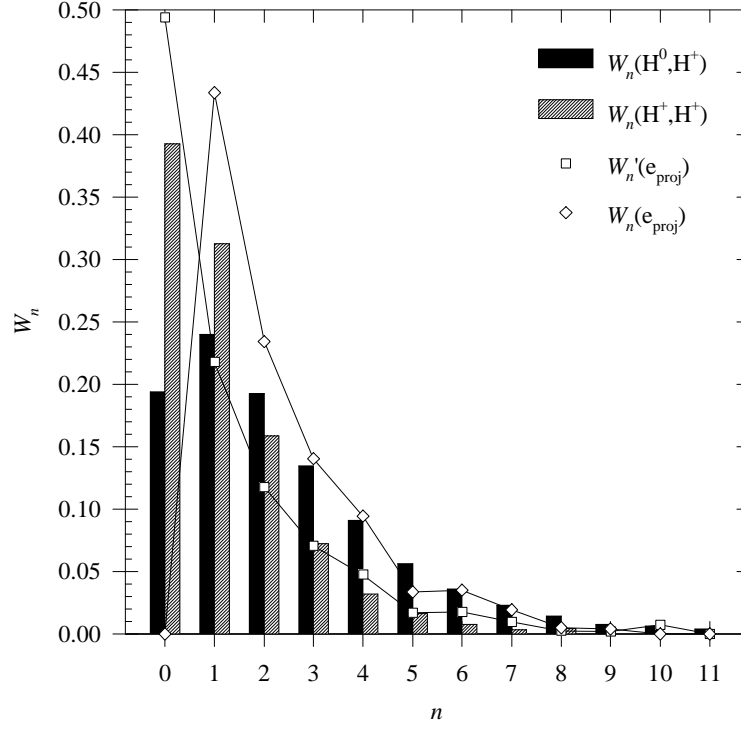


Figure 3.11 : Distributions expérimentales (histogrammes) des électrons émis à l'avant de la cible mince par des H^0 ($W_{nF}(H^0)$) et pour des protons ($W_{nF}(H^+)$) de 2.2 MeV. Distributions $W'_n(e^-_{proj})$ et $W_n(e^-_{proj})$ déduites des précédentes.

probabilité pour que "zéro" électron, résultant des interactions de l'électron projectile dans la cible, soit émis, donc $W'_{0F}(e^-_{proj}) = 1 - T_e$.

La distribution $\{W'_{nF}(e^-_{proj})\}$ pour les valeurs $n \geq 1$ est appelée après normalisation $\{W_{nF}(e^-_{proj})\}$. Elle représente la distribution du nombre d'électrons émis par électron du projectile transmis. La valeur moyenne de la distribution $\{W_{nF}(e^-_{proj})\}$ de la **figure 3.11** est égale à 2.3, elle est égale au rendement $\gamma_F(e^-_{proj})$. Le nombre moyen d'électrons de cascade correspondant est donc de 1.3. En répétant ce processus avec les distributions expérimentales mesurées entre 1.25 et 2.2 MeV, nous avons obtenu une valeur de $\gamma_F(e^-_{proj})$ pratiquement constante sur tout le domaine d'énergie. Cette indépendance de $\gamma_F(e^-_{proj})$ en fonction de l'énergie incidente peut être expliquée par la très grande dispersion en énergie et en angle des électrons projectiles quand ils approchent la face de sortie de la cible. Par contre les valeurs du coefficient de transmission T_e qui sont montrées sur la **figure 3.12** augmentent avec l'énergie incidente, en accord avec l'augmentation du parcours des électrons avec l'énergie. Pour des électrons d'énergie inférieure à 1 keV, il n'existe pas de données précises des parcours dans le carbone. Néanmoins à partir des relations données par KANAYA et ONO [13] on peut estimer que la valeur de 200 Å, équivalente à l'épaisseur de la cible mince inclinée, correspond au parcours d'électrons de 600 eV, soit 1.1 MeV/u. Cette estimation est en accord avec le fait que les électrons de projectile transmis à travers la cible sont détectés pour les énergies incidentes supérieures à 1 MeV.

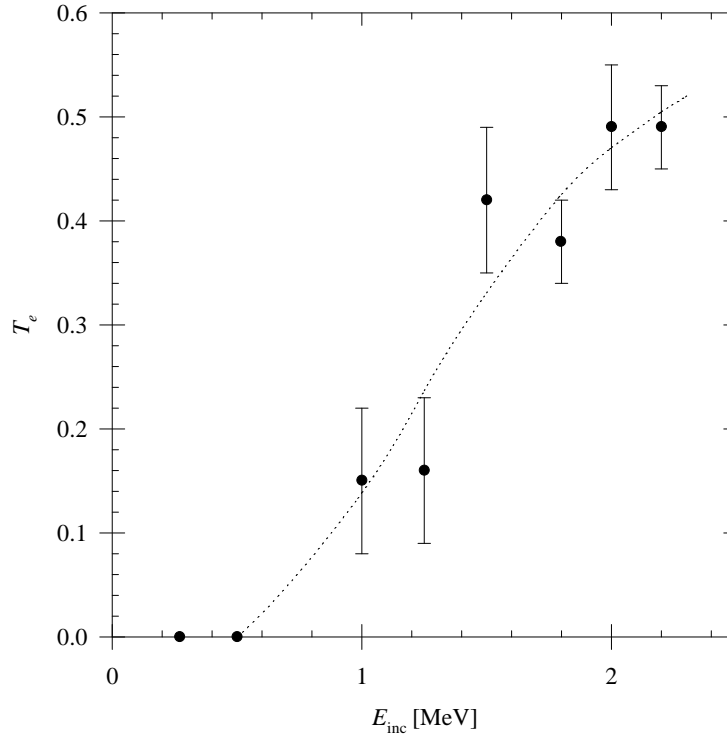


Figure 3.12 : *Evolution de la fraction des électrons du projectile transmise à travers la cible mince en fonction de l'énergie incidente.*

3.3 Emission électronique associée aux neutres émergents

3.3.1 Emission électronique arrière

La **figure 3.13** représente la dépendance en énergie du rendement arrière $\gamma_B(H^0, H^0)$ qui diffère notablement de celle du rendement $\gamma_B(H^0, H^+)$. Si en dessous de 1.25 MeV, les rendements arrière des H^0 mesurés en coïncidence avec des atomes neutres ou des protons sont égaux, pour les énergies supérieures à 1.25 MeV la valeur de $\gamma_B(H^0, H^0)$ chute brutalement en dessous de celle de $\gamma_B(H^+, H^+)$ pour atteindre à 2.2 MeV une valeur deux fois plus petite que $\gamma_B(H^+, H^+)$. Dans des simulations Monte Carlo de l'émission électronique arrière de cibles d'aluminium, DUBUS *et al.* [7] ont également obtenu un rendement réduit environ de moitié pour des H^0 à état de charge gelé par rapport au rendement des protons.

Nos résultats expérimentaux doivent être considérés à la lumière des phénomènes se produisant lors de la traversée d'une cible par un H^0 : ceux-ci peuvent être des atomes reconstitués par la capture d'un électron de la cible par un proton ou peuvent aussi être des atomes transmis sans perte électronique, à état de charge gelé. Si la fraction de neutres du faisceau incident atteint la valeur d'équilibre durant la traversée de la cible, les H^0 émergents sont issus des captures électroniques ayant eu lieu près de la surface de sortie de la cible, c'est à dire bien au delà de la profondeur d'échappement des électrons de la face arrière de la cible. En conséquence, le rendement arrière ne dépend pas de l'état de charge du faisceau émergent. C'est ce que nous observons dans le cas du

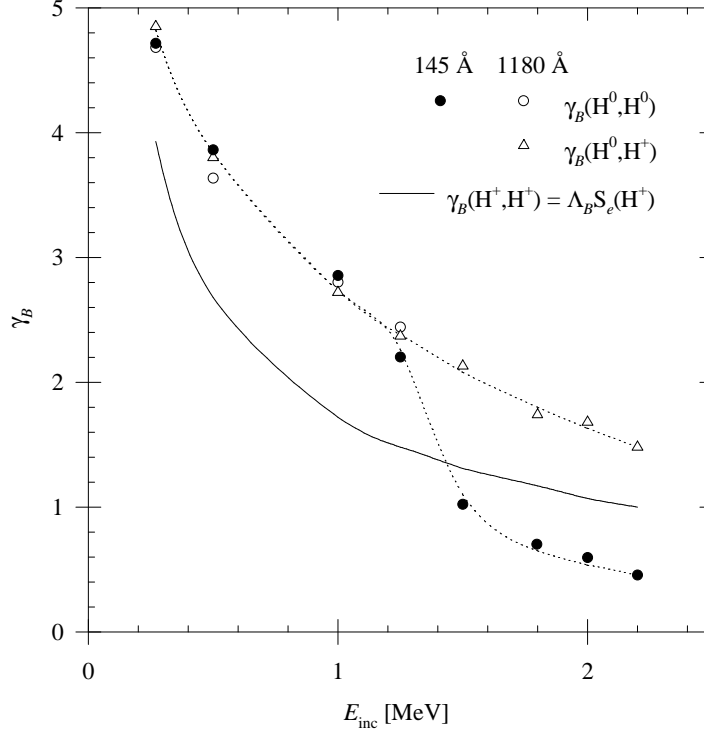


Figure 3.13 : Rendements arrière $\gamma_B(H^0, H^0)$ et $\gamma_B(H^0, H^+)$ obtenus en fonction de l'énergie incidente E pour la cible mince et la cible épaisse. La courbe en trait plein donne pour comparaison le rendement des protons incidents égal à $\Lambda_B S_e(H^+)$.

rendement $\gamma_B(H^0, H^0)$ pour des énergies incidentes inférieures à 1.25 MeV, aussi bien avec la cible mince qu'avec la cible épaisse.

Avec la cible épaisse où la fraction de neutres à l'émergence des cibles est la fraction à l'équilibre de charge, le rendement électronique arrière $\gamma_B(H^0, H^0)$ doit toujours être identique au rendement $\gamma_B(H^0, H^+)$ pour les énergies supérieures à 1.25 MeV. A ces énergies des expériences en coïncidence avec les neutres émergents sont difficilement réalisables car les sections efficaces de perte électronique sont très grandes et la fraction de neutres à l'émergence des cibles est seulement de l'ordre de 10^{-4} (cf. figure 3.3 p. 73).

La formule du pouvoir d'arrêt de BETHE pour les ions nus a été étendue au cas des ions partiellement épluchés [15] et une formule analytique a été proposée pour des projectiles hydrogénéoïdes à l'état fondamental et dont l'état de charge est gelé pendant toute la traversée de la cible [14] (formule (1.8) p. 9). Pour un H^0 incident de 2 MeV à état de charge gelé le pouvoir d'arrêt du carbone calculé à l'aide de cette formule est 0.56 fois plus petit que pour un proton. A partir de cette valeur et du rendement $\gamma_B(H^0, H^0)$ mesuré à 2 MeV et à 2.2 MeV, on peut calculer la valeur moyenne du facteur de proportionnalité Λ_B^0 entre le rendement arrière et le pouvoir d'arrêt $S_e(H^0)$ du carbone pour des H^0 :

$$\Lambda_B^0 = 0.41 \pm 0.06 \text{ Å/eV} \quad (3.31)$$

Cette valeur est à comparer à celle qui a été déduite des résultats des protons incidents (cf. formule (3.9) p. 76) : $\Lambda_B = 0.44 \pm 0.02 \text{ Å/eV}$.

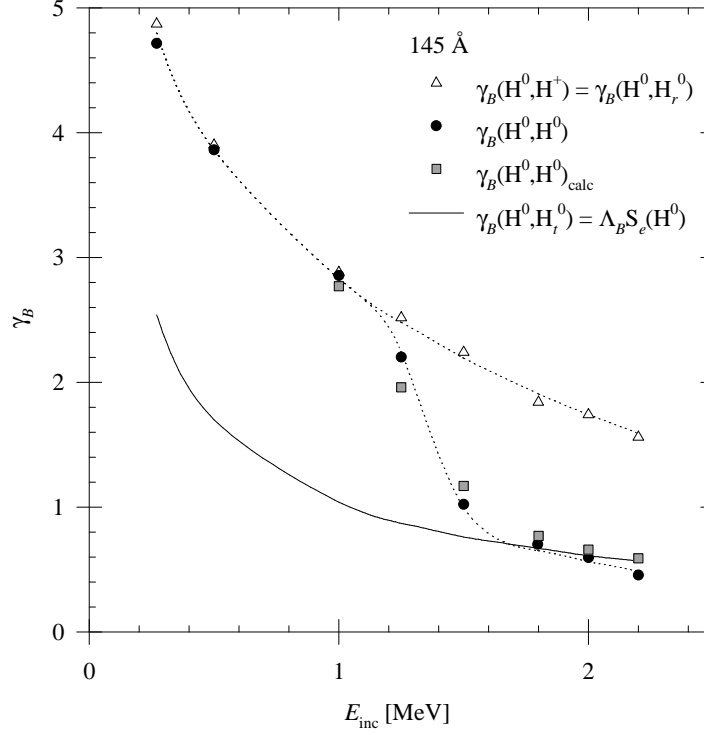


Figure 3.14 : Rendements expérimentaux arrière $\gamma_B(H^0, H^0)$ et $\gamma_B(H^0, H^+)$ et rendement et $\gamma_B(H^0, H^0)$ calculé en fonction de l'énergie incidente E . La courbe $\Lambda_B S_e(H^0)$ représente la variation du rendement $\gamma_B(H^0, H^0)$.

Le bon accord entre les valeurs de Λ_B^0 et Λ_B indique que ce paramètre peut être considéré comme une caractéristique de la cible, indépendante du projectile, qui relie l'émission électronique arrière à la perte d'énergie du projectile incident. Le rendement arrière $\gamma_B(H^0, H_t^0)$ correspondant aux H^0 transmis a été calculé sur tout le domaine d'énergie en utilisant la valeur de Λ_B déterminée précédemment dans le cas des des protons. Il est représenté sur la **figure 3.14** par la courbe en trait plein. Afin de reconstituer la dépendance en énergie mesurée expérimentalement de $\gamma_B(H^0, H^0)$, nous avons besoin de connaître les rendements $\gamma_B(H^0, H_r^0)$ dûs aux H^0 reconstitués émergeant de la cible. Comme nous l'avons discuté plus haut, il est évident que ce rendement est égal à celui mesuré en coïncidence avec des protons :

$$\gamma_B(H^0, H_r^0) = \gamma_B(H^0, H^+) \quad (3.32)$$

Le rendement arrière $\gamma_B(H^0, H^0)$, peut être écrit comme la somme du rendement dû à la fraction de H^0 reconstitués et du rendement dû à la fraction de H^0 transmis, soit pour une énergie incidente donnée :

$$\gamma_B(H^0, H^0) = \frac{\sigma_c}{\sigma_\ell} \gamma_B(H^0, H^+) + \gamma_B(H^0, H_t^0) \exp(-\sigma_\ell N d) \quad (3.33)$$

En utilisant les fractions calculées de H^0 transmis ($\exp(-\sigma_\ell N d)$) et de H^0 reconstitués (σ_c/σ_ℓ) que nous avons données dans le **tableau 3.1** et sur la **figure 3.3**, nous avons calculé les rendements $\gamma_B(H^0, H^0)$ qui sont montrés sur la **figure 3.14** et qui reproduisent très bien les valeurs expérimentales.

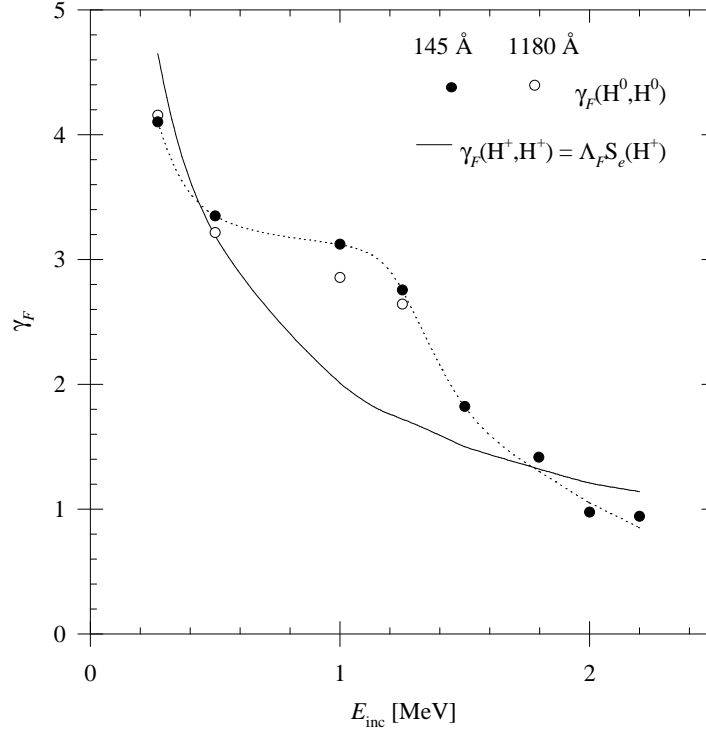


Figure 3.15 : Rendements avant $\gamma_F(H^0, H^0)$ en fonction de l'énergie incidente E . La courbe en trait plein donne pour comparaison le rendement des protons incidents égal à $\Lambda_F S_e(H^+)$.

3.3.2 Emission électronique avant

La variation avec l'énergie incidente du rendement avant $\gamma_f(H^0, H^0)$ mesuré en coïncidence avec les neutres émergeant des cibles est montrée sur la **figure 3.15**. Il est évident que les rendements avant de la cible mince doivent refléter les fractions relatives dans le faisceau de neutres émergents des atomes reconstitués H_r^0 et des atomes transmis H_t^0 . On observe bien que pour une énergie incidente supérieure à 1.25 MeV le rendement avant de la cible mince chute très rapidement avec l'énergie, pour devenir inférieur à celui des protons incidents $\gamma_F(H^+, H^+)$, et atteindre la valeur $\gamma_F(H^0, H^0) = 0.85 \times \gamma_F(H^+, H^+)$ à 2.2 MeV (à comparer avec le facteur 0.5 obtenu pour l'émission arrière). Pour des énergies incidentes comprises entre 0.5 et 1.25 MeV, c'est à dire quand les atomes H^0 sortant sont des H_r^0 reconstitués, on observe une augmentation du rendement avant aussi bien pour la cible mince que pour la cible épaisse.

De telles variations avec l'énergie incidente ne peuvent être dues qu'à des processus d'interaction différents, nous allons les discuter séparément.

Emission induite par les atomes H^0 transmis à état de charge gelé

La **figure 3.15** montre que l'émission électronique avant induite par des H^0 à état de charge gelé au dessus de 2 MeV est inférieure à celle d'un proton de même vitesse incidente, tout comme l'émission arrière.

A partir des rendements mesurés à 2 MeV et 2.2 MeV, la relation de proportionnalité liée au pouvoir d'arrêt pour H^0 conduit à la valeur suivante pour le coefficient Λ_F^0 :

$$\Lambda_F^0 = 0.71 \pm 0.02 \text{ Å/eV} \quad (3.34)$$

à comparer avec la détermination qui avait été faite dans le cas de protons incidents: $\Lambda_F = 0.49 \pm 0.02 \text{ Å/eV}$. L'explication de cette différence peut être recherchée en considérant plus en détail l'interaction d'un H^0 incident avec les électrons de la cible. En ce sens il devient utile de comparer l'émission électronique induite par un proton et par un H^0 transmis au moyen du rapport de leurs rendements γ_F/γ_B .

En règle générale, la différence entre les rendements électroniques avant et arrière d'une cible mince est due aux électrons δ créés lors des collisions à faible paramètre d'impact projectile-électron et qui partagent ensuite leur énergie initiale élevée avec beaucoup d'électrons de cascade moins énergétiques. La distribution des électrons δ est anisotrope et très fortement piquée vers l'avant, ce qui conduit à augmenter le nombre d'électrons émis par la face avant, et donc à obtenir un rapport $\gamma_F/\gamma_B > 1$. Cependant, cet effet est limité car la contribution relative des électrons δ est petite. Pour des protons, on obtient expérimentalement :

$$\frac{\gamma_F(H^+, H^+)}{\gamma_B(H^+, H^+)} = 1.1 \quad (3.35)$$

Pour des projectiles H^0 à état de charge gelé, la valeur obtenue à 2.0 MeV est de

$$\frac{\gamma_F(H^0, H_t^0)}{\gamma_B(H^0, H_t^0)} = 1.6 \quad (3.36)$$

Dans ce cas, les collisions distantes à grands paramètres d'impact, supérieurs à quelques rayons atomiques a_0 disparaissent à cause de l'écrantage mutuel du proton et de l'électron. Les collisions proches de l'électron du projectile avec les électrons de la cible sont également supprimées puisqu'elles conduiraient à l'ionisation de H^0 . Le rôle joué par l'électron du projectile incident est donc uniquement d'écranter le proton. En conséquence, l'émission électronique induite par les H^0 à état de charge gelé provient essentiellement des collisions à petits paramètres d'impact du proton du projectile avec les électrons de la cible. Donc la contribution relative des électrons δ résultant de ces collisions augmente, ce qui explique l'augmentation du rapport γ_F/γ_B .

Emission induite par les atomes H^0 reconstitués par capture électronique

L'émission électronique avant induite par des H^0 reconstitués peut être mesurée à l'aide d'un faisceau de protons ou bien de H^0 , si le faisceau émergent a atteint l'équilibre de charge dans la cible. Avec les faisceaux incidents de H^0 , cette situation correspond aux expériences avec la cible mince pour des énergies inférieures à 1 MeV, et à toutes les expériences réalisées avec la cible épaisse.

Pour expliquer l'augmentation du rendement des H^0 reconstitués par rapport à celui des protons, que l'on observe entre 0.5 et 1.5 MeV, nous devons examiner les processus de capture électronique dominants pour un proton à ces énergies: ce sont la capture AUGER d'un électron de la bande de valence du solide et la capture d'un électron des niveaux de cœur de l'atome cible [9]. La

capture d'un électron de valence est importante à basse énergie. Sa section efficace décroît de façon monotone avec l'énergie incidente du projectile. La section efficace de capture d'un électron de cœur par le projectile présente par contre un maximum quand la vitesse incidente du projectile est égale à la vitesse orbitale de l'électron de l'atome cible. Les sections efficaces de capture K calculées [22] présentent une dépendance envers la vitesse incidente qui reproduit assez bien les expériences. Pour des atomes de carbone, dont l'énergie de liaison de la couche K est de 284 eV, les captures K deviennent le processus dominant pour des énergies incidentes supérieures à 300 keV. La désexcitation des atomes de carbone ainsi ionisés se produira ensuite essentiellement par décroissance AUGER, car le rendement de fluorescence du carbone, donné par l'équation (1.30) page 19, est égal à : $\omega_K = 210^{-3}$.

Etant donné qu'un H^0 reconstitué émergeant d'une cible doit résulter d'une capture s'étant produite à une profondeur moyenne λ_0 de la surface de sortie, la désexcitation par effet AUGER des atomes de carbone excités contribuera aussi à l'émission électronique secondaire de la face avant de la cible, par l'électron AUGER lui-même ou par les électrons de cascade qu'il aura eu la possibilité de produire. La détection d'électrons AUGER en coïncidence avec des projectiles ayant changé de charge a d'ailleurs déjà été utilisée pour mesurer les sections efficaces de capture des électrons des couches internes dans des collisions ions-atomes avec des cibles gazeuses [21]. Dans notre cas où la profondeur d'échappement λ_{se} est plus grande que le libre parcours moyen λ_0 du H^0 , le rendement électronique mesuré $\gamma_F(H^0, H_r^0)$ est égal à la somme des différentes contributions dues aux changements de nature du projectile dans la profondeur d'échappement λ_{se} : les électrons secondaires produits par un proton sur une profondeur moyenne $(\lambda_{se} - \lambda_0)$ et par des atomes H^0 à état de charge gelé sur une profondeur moyenne λ_0 . Les électrons AUGER du carbone produits initialement de façon isotrope peuvent ensuite éventuellement s'échapper du solide et exciter des électrons secondaires par collisions inélastiques sur leur trajet depuis la longueur λ_0 jusqu'à la surface. Les rendements $\gamma_F(H^0, H^0) = \gamma_F(H^0, H_r^0)$ mesurés à 1 et 1.25 MeV pour la cible épaisse diffèrent des rendements des protons d'une valeur proche de l'unité (cf. figure 3.15). Comme l'électron AUGER, de par sa distribution isotrope dans la cible, a une contribution au plus égale à 0.5, cela veut dire que les électrons de cascade contribuent de façon significative au rendement, en dépit du fait que les électrons AUGER sont produits près de la surface de la cible.

3.4 Récapitulatif des aspects particuliers de l'EES induite par des atomes H^0

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté nos expériences sur l'émission électronique secondaire induite par des atomes neutres d'hydrogène. Dans cette étude nous avons mis en évidence certains résultats particuliers de celle-ci :

- Pour les projectiles H^0 transmis à état de charge gelé à travers une cible très mince de carbone, les rendements d'émission électronique arrière et avant sont plus petits que les rendements électroniques induits par des protons de même vitesse. Cette réduction de l'émission

électronique qui atteint un facteur deux pour l'émission arrière est due à l'écrantage de la charge du proton par l'électron lié de l'atome H^0 . La différence entre l'émission arrière et l'émission avant montre quelle part des interactions du projectile avec les électrons du solide est affectée par l'effet d'écrantage. Ce sont les collisions distantes à très grand paramètre d'impact qui sont supprimées et conduisent ainsi à une augmentation de la part relative des collisions proches. Les électrons δ issus de ces collisions, qui sont émis vers l'avant auront donc une contribution relative à l'émission électronique avant plus grande que dans le cas des protons incidents.

- Les électrons perdus par le projectile H^0 interviennent dans l'émission électronique avant des cibles minces et à des énergies incidentes supérieures à 1 MeV/uma, quand l'électron perdu du projectile a une énergie suffisante pour traverser la cible et induire des cascades d'électrons près de la face de sortie des cibles. La déconvolution des distributions $\{W_{nF}(H^0, H^+)\}$ mesurées pour des H^0 incidents par les distributions $\{W_{nF}(H^+, H^+)\}$ mesurées pour des protons incidents permet de calculer les distributions des électrons émis par l'électron du projectile transmis en fonction de l'énergie incidente. Cette méthode nous permet aussi d'accéder à la probabilité de transmission d'un électron à travers une cible mince en fonction de son énergie incidente.
- L'émission électronique secondaire avant induite par des H^0 reconstitués, c'est à dire qui résultent de la capture électronique d'un électron du solide par un proton, augmente au dessus de 500 keV, à des énergies où les phénomènes de capture se font avec des électrons de la couche K , de vitesse comparable à celle du projectile. Les atomes de la cible ainsi excités par ces phénomènes de capture se désexcitent ensuite par voie AUGER, le rendement de fluorescence ω_K des atomes de carbone étant négligeable. Les atomes H^0 reconstitués qui émergent des cibles ont capturé leur électron à une profondeur moyenne λ_0 ($\lambda_0 \leq \sim 30 \text{ \AA}$) de la surface de sortie. Les électrons AUGER émis sur cette profondeur dans 4π stéradians peuvent s'échapper de la cible et aussi créer des électrons de cascade près de la surface. Ils participent ainsi à l'émission électronique secondaire de la face avant de la cible.

3. Emission électronique induite par des atomes H^0

Bibliographie


- [1] H.H. ANDERSEN, J.F. ZIEGLER,
“*The Stopping & Ranges of Ions in Matter*” —J.F. ZIEGLER Ed., Pergamon Press,
New-York, Vol. 3(1977).
- [2] O. BENKA, A. SCHINNER, T. FINK,
Phys. Rev. A, **51**(1995)2281.
- [3] A. BILLEBAUD,
Thèse de doctorat, Université Lyon I Claude Bernard (1995).
- [4] A. BILLEBAUD, M. FALLAVIER, R. KIRSCH, J.-C. POIZAT, J. REMILLIEUX, Z. VI-
DOVIĆ,
Phys. Rev. A, **55**(1997)1124.
- [5] A. CHATEAU-THIERRY, A. GLADIEUX,
“*Atomic Collisions in Solids*” —S. DATZ, B.R. APPLETON et C.D. MOAK Ed., Plenum
Press, New-York, **1**(1975)307.
- [6] M.C. CROSS,
Phys. Rev. B, **15**(1977)602.
- [7] A. DUBUS, M. RÖSLER,
Nucl. Instr. Meth. B, (à paraître en 1997).
- [8] A. DUBUS, J. DEVOOGHT, A. BILLEBAUD, R. KIRSCH, M. FALLAVIER, J.-C. POIZAT,
J. REMILLIEUX, Z. VIDOVIĆ,
Nucl. Instr. Meth. B, **125**(1997)45.
- [9] P.M.. ECHENIQUE, F. FLORES, R.H. RITCHIE,
“*Solid State Physics, Advances in Research and Applications*” —H. EHRENREICH et
D. TURNBULL Ed., Academic, New-York, **43**(1990)229.
- [10] M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX, M. AUZAS,
Phys. Rev. A, **16**(1977)2323.

- [11] S.N. GHOSH, S.P. KHARE,
Phys. Rev., **125**(1962)1254.
- [12] J. HÖLZL, K. JACOBI,
Surf. Sci., **14**(1969)351.
- [13] K. KANAIA, S. ONO,
J. Phys. D: Appl. Phys., **9**(1976)161.
- [14] T. KANEKO,
Phys. Rev. A, **43**(1991)4780.
- [15] Y.K. KIM, K.T. CHENG,
Phys. Rev. A, **22**(1980)61.
- [16] K. KRONEBERGER, A. CLOUVAS, G. SCHLÜSSLER, P. KOSCHAR, J. KEMMLER,
H. ROTHARD, C. BIEDERMANN, O. HEIL, M. BURKHARD, K.O. GROENEVELD,
Nucl. Instr. Meth. B, **29**(1988)621.
- [17] S. LENCINAS, J. BURGDÖRFER, J. KEMMLER, O. HEIL, K. KRONENBERGER,
N. KELLER, H. ROTHARD, K.O. GROENEVELD,
Phys. Rev. A, **41**(1990)1435.
- [18] Y. NAKAI, T. SHIRAI, T. TABATA, R. ITO,
At. Data and Nucl. Data Tables, **37**(1987)69.
- [19] H. OGAWA, N. SAKAMOTO, I. KATAYAMA, Y. HARUYAMA, M. SAITO, K. YOSHIDA,
M. TOSAKI, Y. SUZUKI, K. KIMURA,
Phys. Rev. A, **54**(1996)5027.
- [20] L. REIMER,
“*Scanning Electron Microscopy*”, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (1985).
- [21] M. RØDBRO, E. HORS DAL PEDERSEN, C.L. COCKE, J.R. MACDONALD,
Phys. Rev. A, **19**(1979)1936.
- [22] V.P. SHEVELKO,
Z. Phys. A, **287**(1978)19.
- [23] E.J. STERNGLASS,
Phys. Rev., **108**(1957)1.
- [24] L.H. TOBUREN, M.Y. NAKAI, R.A. LANGLEY,
Phys. Rev., **171**(1968)114.

Emission électronique secondaire induite par des ions moléculaires

4.

H_2^+ et H_3^+

OBJET DE CE CHAPITRE est l'étude de l'émission électronique secondaire de feuilles minces de carbone amorphe sous l'impact d'ions H_2^+ et H_3^+ rapides, d'énergie incidente comprise entre 0.20 et 1.0 MeV par proton. Lorsque de tels ions pénètrent dans un solide, ils se dissocient très rapidement au cours des interactions avec les atomes du solide. Au long de leur parcours dans le solide, les ions fragments s'éloignent les uns des autres à cause de la répulsion coulombienne entre fragments et de la diffusion multiple sur les atomes du solide. Nous avons présenté dans le **chapitre 1** ces particularités de l'interaction des ions polyatomiques avec les solides et rappelé quelques résultats de mesures de perte d'énergie qui en illustrent les conséquences. L'explosion des ions polyatomiques intervient près de la surface d'entrée des cibles, à l'intérieur de la profondeur moyenne d'échappement des électrons secondaires. L'émission électronique est donc susceptible d'apporter des informations sur les effets collectifs dans les interactions des ions intacts dans les premières couches atomiques du solide et aussi sur les processus d'interaction des ions constituants qui sont séparés après explosion, mais sont encore si proches les uns des autres que des effets de corrélation peuvent subsister. L'écart entre le rendement électronique de l'émission induite par un ion moléculaire ou un agrégat et la somme des rendements électroniques produits par ses constituants individuels est généralement appelé "*effet moléculaire*" ou "*effet agrégat*". Avec l'emploi de cibles minces, l'émission électronique avant est caractéristique des interactions des fragments issus de la dissociation, qui dépendent de leur distance de séparation en sortie des cibles et donc de l'épaisseur des cibles. En effet on s'attend à ce que la somme des rendements des constituants indépendants constitue la valeur limite du rendement électronique avant, atteinte pour des cibles suffisamment épaisses. L'émission avant est donc susceptible d'apporter des informations sur la portée des effets moléculaires.

Les expériences que nous avons réalisées avec les ions H_2^+ et H_3^+ d'énergie supérieure à 200 keV/u font suite à des études expérimentales antérieures faites à plus basse énergie avec des agrégats

H_n^+ incidents sur des feuilles de carbone [13] [3]. L'effet agrégat observé dans ces expériences correspond à des rendements électroniques par constituant de l'agrégat pour les émissions arrière et avant plus petits que les rendements d'un proton seul de même vitesse. La dépendance en énergie des rendements arrière montre que les effets collectifs diminuent pour des énergies incidentes croissantes. Les effets collectifs sur le rendement électronique avant, dépendants de l'épaisseur des cibles, ne disparaissent que pour des cibles relativement épaisses, d'environ 3000 Å. Un résultat également intéressant est que les effets collectifs dépendent de la taille de l'agrégat seulement pour les petits agrégats ($n < 9$). La réduction de l'émission électronique cinétique par atome d'un agrégat par rapport à celle induite par l'ion monoatomique de même vitesse n'est pas une particularité des agrégats d'hydrogène. Cet effet a également été observé dans les rendements électroniques arrière induits par des agrégats d'atomes plus lourds, notamment des agrégats Au_n^+ ($1 \leq n \leq 5$) d'énergie inférieure à 500 keV/u incidents sur des cibles isolantes de CsI [2].

A partir de ces résultats sur les rendements électroniques, il apparaissait donc intéressant d'entreprendre une étude plus détaillée avec des mesures de la statistique de l'émission électronique par des ions à petit nombre de constituants comme les ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ . La configuration de détection des électrons émis à l'arrière et à l'avant des cibles est la même que pour les expériences avec les atomes H^0 , les cibles de carbone sont également les mêmes (cible mince : $d = 145$ Å et cible épaisse : $d = 1180$ Å). Le détecteur de projectiles le plus proche des cibles (D_1 , cf. **figure 2.1 p. 43**) est utilisé car il permet de réaliser les coïncidences avec le signal correspondant à la détection simultanée de tous les fragments transmis à travers les cibles. Les résultats des expériences seront discutés, comme précédemment, en comparaison aux résultats des mesures réalisées dans les mêmes conditions expérimentales avec des protons incidents de même vitesse.

4.1 Emission électronique secondaire arrière

Nous allons tout d'abord présenter et discuter les mesures de l'émission électronique arrière des cibles de carbone à l'impact des ions H_2^+ et H_3^+ . Des spectres d'électrons expérimentaux obtenus avec des ions H_2^+ de différentes énergies sont montrés à titre d'exemple sur la **figure 4.1** avec les distributions statistiques correspondantes. On peut noter que les spectres d'électrons correspondent à la détection d'électrons de grande multiplicité, les événements à "zéro" électron étant très rares, et cela d'autant plus que l'énergie incidente est faible.

4.1.1 Libre parcours moyen des ions H_2^+ et H_3^+

Comme dans le cas des atomes H^0 incidents, nous devons tout d'abord examiner comment varient les fractions des projectiles moléculaires H_2^+ et H_3^+ tout au long de leur trajet dans la cible. La durée de vie de ces projectiles dans les cibles est une information très importante qui va nous permettre d'accéder aux libres parcours moyens $\lambda_0(H_2^+)$ et $\lambda_0(H_3^+)$ des ions H_2^+ et H_3^+ incidents.

Le groupe "Collisions Atomiques dans les Solides" [5] [6] a mesuré dans des expériences de

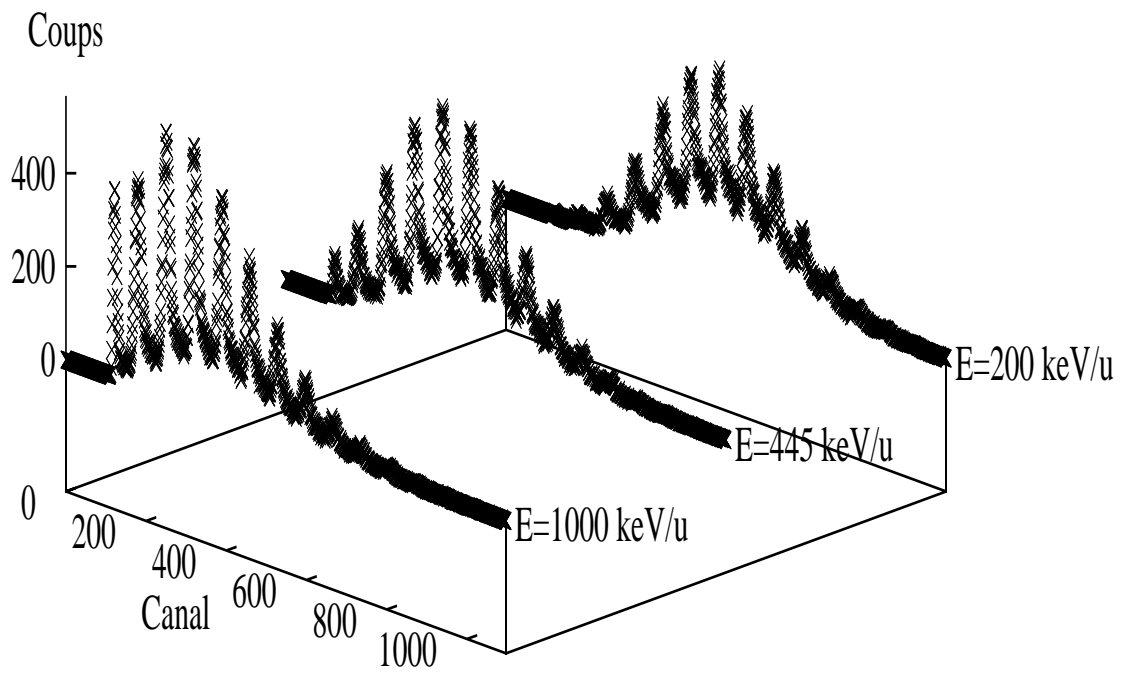
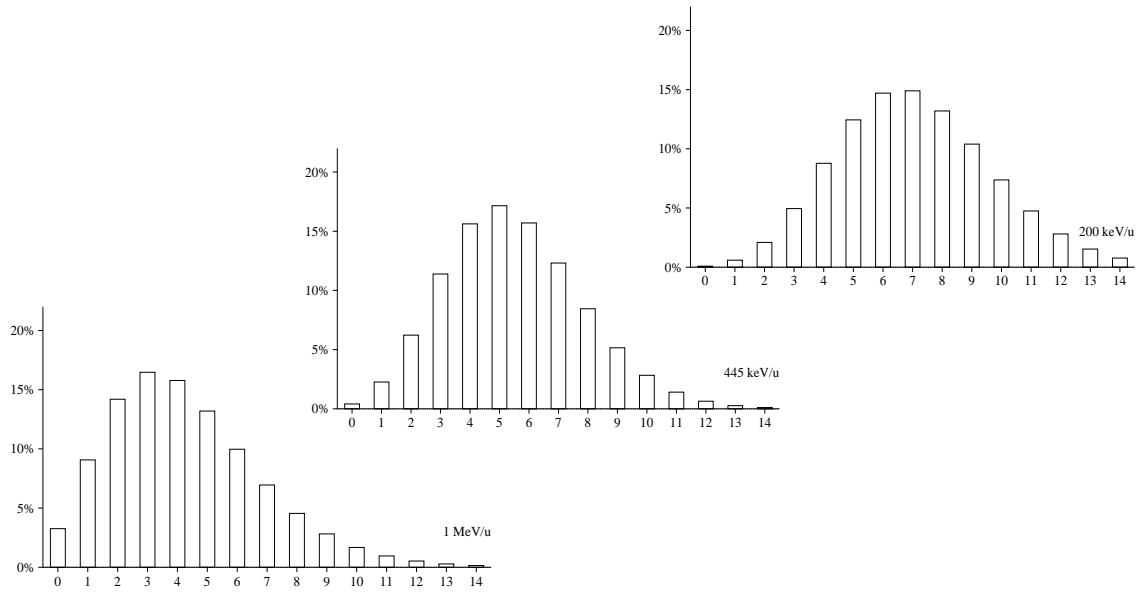


Figure 4.1 : Spectres d'électrons obtenus avec des ions H_2^+ de différentes énergies et distributions statistiques correspondantes.

transmission à travers des feuilles minces de carbone d'épaisseur variant entre 2 et 8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, la durée de vie τ des ions H_2^+ d'énergie comprise entre 1.4 et 1.2 MeV/u et des ions H_3^+ de 0.8 MeV/u. Dans ce très faible domaine de vitesse et pour des cibles très minces, correspondant à des temps de passage t inférieurs à environ deux femtosecondes, les fractions d'ions moléculaires transmises $\phi(t)$ décroissent exponentiellement avec le temps de passage t .

$$\phi(t) = \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (4.1)$$

que l'on peut également écrire en fonction de l'épaisseur x du solide traversé et de la vitesse incidente v :

$$\phi(x) = \exp\left(-\frac{x}{\tau v}\right) \quad (4.2)$$

Les durées de vie mesurées sont les suivantes :

$$\tau(H_2^+) = 1.7 \cdot 10^{-16} \text{ s} \quad (4.3)$$

$$\tau(H_3^+) = (1.18 \pm 0.13) 10^{-16} \text{ s} \quad (4.4)$$

On peut en déduire le libre parcours moyen λ_0 des ions moléculaires :

$$\lambda_0(H_{2,3}^+) = \tau(H_{2,3}^+)v \quad (4.5)$$

Le **tableau 4.1** donne pour les différentes énergies incidentes par proton de nos expériences la vitesse v/v_0 (v_0 est la vitesse de BOHR) en unités atomiques, les temps de passage t_d en femtosecondes dans la cible mince et les valeurs numériques des libres parcours moyens $\lambda_0(H_2^+)$ et $\lambda_0(H_3^+)$ des H_2^+ et des H_3^+ dans du carbone. On constate que le libre parcours moyen des ions H_3^+ est un peu plus petit que celui des ions H_2^+ . Mais ces valeurs sont toutefois comparables et sont aussi du même ordre que le libre parcours moyen de l'atome H^0 de même vitesse (cf. **tableau 3.1 p. 74**). La durée de vie de ces différents projectiles peut donc être considérée comme étant la durée de vie de l'électron à l'état lié.

Pour les ions H_2^+ , CUE *et al.* ont observé que la fraction d'ions moléculaires pour des temps de passage dans les cibles supérieurs à 1.5 femtosecondes décroît plus lentement. Cela est dû aux ions moléculaires H_2^+ qui se reconstituent à l'émergence des cibles quand les distances de séparation des protons sont très petites. Ces fractions d'ions H_2^+ à l'émergence des cibles sont néanmoins très faibles. Pour les ions H_2^+ les plus rapides dans nos expériences (1.0 MeV/u) elles sont de l'ordre de 10^{-4} en sortie de la cible mince. Bien évidemment la probabilité de reconstitution d'un ion moléculaire dépend de sa structure. Il n'est donc pas surprenant qu'elle ne soit pas observée pour les ions H_3^+ triangulaires. A 1 MeV/u la fraction de H_3^+ transmise à travers la cible mince est inférieure à 10^{-5} . Ces fractions transmises sont donc tout fait négligeables dans la production des électrons secondaires.

4.1.2 Résultats de l'émission électronique arrière

La **figure 4.2** montre les rendements de l'émission électronique secondaire arrière de la cible mince et de la cible épaisse de carbone à l'impact de H_2^+ et H_3^+ d'énergies comprises entre 150 keV et 1 MeV

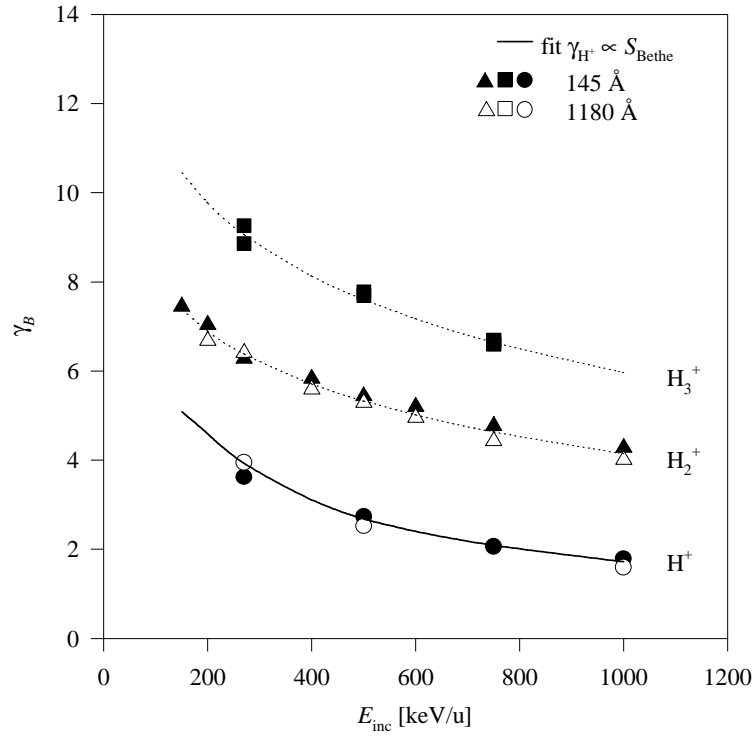


Figure 4.2 : Rendements par projectile incident de l'émission électronique secondaire arrière de la cible mince et de la cible épaisse de carbone à l'impact de H^+ , H_2^+ et H_3^+ entre 150 keV et 1 MeV/uma.

par proton. Les rendements électroniques induits par des protons incidents ainsi que leur ajustement par la courbe de pouvoir d'arrêt du carbone (d'après ANDERSEN et al. [1]) sont également montrés pour comparaison. Les rendements électroniques arrière sont indépendants de l'épaisseur des cibles conformément à la valeur de la profondeur moyenne d'échappement des électrons λ_{se} de 100 Å, inférieure à l'épaisseur de la cible la plus mince. Ces rendements électroniques augmentent avec le nombre de constituants de l'ion incident, leur décroissance avec l'énergie est liée à la diminution de la perte d'énergie électronique des protons avec l'énergie incidente.

La **figure 4.3** représente les variations du paramètre b_B de PÓLYA des distributions de l'émission électronique arrière de la cible mince et de la cible épaisse de carbone à l'impact de H^+ , H_2^+ et H_3^+ entre 150 keV et 1 MeV/uma. Nous voyons que les valeurs de ces paramètres augmentent en fonction de l'énergie et que pour chaque énergie nous avons $b_B(H^+) > b_B(H_2^+) \geq b_B(H_3^+)$. L'augmentation du paramètre $b_B(H^+)$ a déjà été discutée dans le **chapitre 3**. Pour des énergies incidentes inférieures

E [keV/uma]	150	200	270	400	500	600	750	1000
v/v_0 [ua]	2.46	2.84	3.30	4.02	4.49	4.92	5.50	6.35
t_d [fs]	3.81	3.30	2.84	2.33	2.08	1.90	1.70	1.47
$\lambda_0(H_2^+)$ [Å]	9	11	12	15	17	18	21	24
$\lambda_0(H_3^+)$ [Å]	6	7	9	10	12	13	14	16

Tableau 4.1 : Libres parcours moyens $\lambda_0(H_2^+)$ et $\lambda_0(H_3^+)$ des H_2^+ et des H_3^+ , vitesses v/v_0 des projectiles en unités atomiques et temps de passage t_d dans la cible mince de carbone en fonction de l'énergie incidente par proton.

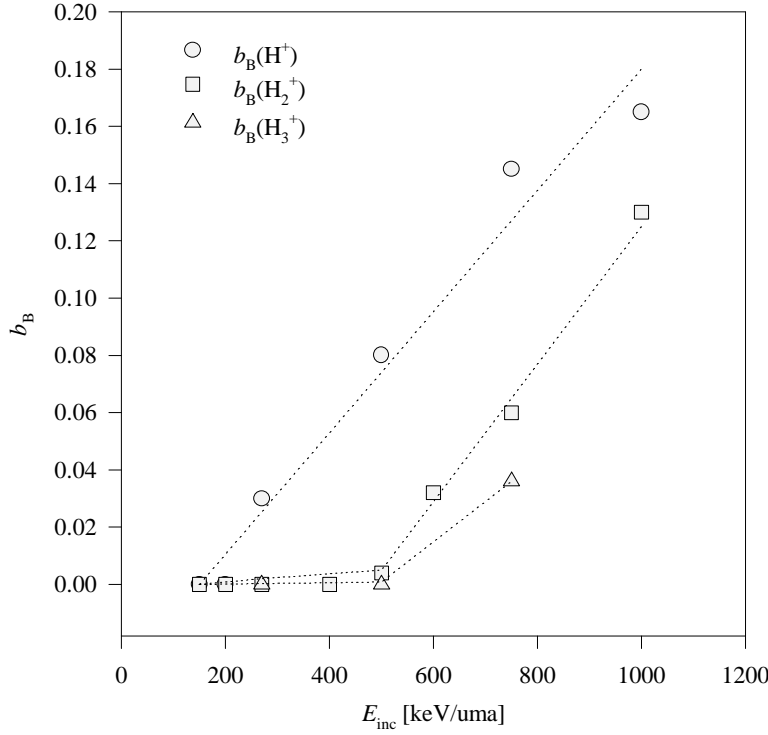


Figure 4.3 : Evolution des paramètres b_B de PÓLYA des distributions de l'émission électronique arrière de la cible mince et de la cible épaisse de carbone à l'impact de H^+ , H_2^+ et H_3^+ entre 150 keV et 1 MeV/uma.

à 500 keV/uma, les valeurs de $b_B(H_{2,3}^+)$ proches de 0 indiquent que les distributions expérimentales se rapprochent de distributions de POISSON.

4.1.3 Discussion des rendements électroniques arrière

Les rendements mesurés peuvent être discutés en comparant le rendement électronique pour un ion moléculaire à la somme des rendements électroniques de ses constituants indépendants. En particulier, les effets moléculaires exprimés par $R_B(H_2^+)$ et $R_B(H_3^+)$ sont montrés sur la **figure 4.4** en fonction de l'énergie incidente par proton. On constate que ces effets sont négatifs, le rendement électronique d'un ion moléculaire est plus petit que la somme de rendements électroniques des ses constituants, et qu'ils sont plus importants pour les ions H_3^+ que pour les ions H_2^+ . Par ailleurs ils diminuent pour des énergies incidentes croissantes.

Nous devons rappeler qu'un effet moléculaire négatif sur les rendements électroniques arrière à l'impact d'ions H_2^+ et H_3^+ d'énergie inférieure à 200 keV/u a été observé depuis longtemps aussi bien pour des cibles métalliques que pour du graphite [11] [14] [8] [10]. En négligeant la contribution des électrons incidents à la production d'électrons secondaires, ce qui est justifié à basse énergie, les auteurs arrivaient à la conclusion que le rendement électronique par atome d'un ion moléculaire est plus petit que celui du proton. Par contre pour des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ d'énergies plus élevées (jusqu'à 1.2 MeV/u), le rendement électronique par proton a été mesuré par ROTHARD *et al.* [12] plus grand que le rendement du proton seul, résultat attribué aux électrons secondaires produits par les électrons incidents. Nos résultats de la **figure 4.4** montrent que si l'on tient compte du

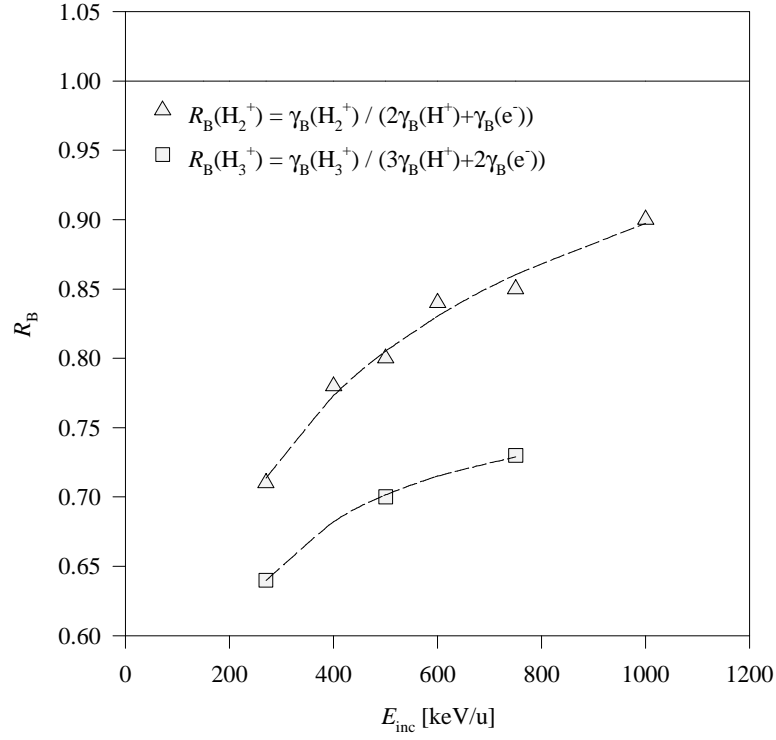


Figure 4.4 : Effets moléculaires $R_B(\text{H}_2^+)$ et $R_B(\text{H}_3^+)$ calculés pour l'émission électronique arrière de cibles de carbone inclinées à 45° par rapport au faisceau incident.

rendement électronique des électrons incidents, l'effet moléculaire reste négatif jusqu'à 1.0 MeV/u. Pour discuter ces résultats nous devons considérer que les ions incidents changent de nature lors de leur pénétration dans le solide.

En particulier, si $\gamma_B(\text{H}^+)$ et $\gamma_B(\text{e}^-)$ sont les rendements mesurés avec des protons et des électrons de même vitesse incidente que l'ion moléculaire, nous pouvons définir l' "effet moléculaire arrière" par les quantités :

$$R_B(\text{H}_2^+) = \frac{\gamma_B(\text{H}_2^+)}{2\gamma_B(\text{H}^+) + \gamma_B(\text{e}^-)} \quad (4.6)$$

$$R_B(\text{H}_3^+) = \frac{\gamma_B(\text{H}_3^+)}{3\gamma_B(\text{H}^+) + 2\gamma_B(\text{e}^-)} \quad (4.7)$$

Nous avons utilisé pour $\gamma_B(\text{e}^-)$ le rendement arrière de cibles minces de carbone à l'impact d'électrons mesuré par HÖLZL *et al.* [9]. Les ions moléculaires incidents se dissocient dans la profondeur d'échappement λ_{se} , donc au delà de leurs libres parcours moyens λ_0 et les fragments de dissociations (protons et électrons) contribuent à l'excitation des électrons du solide. L'émission électronique des faces arrière des cibles résulte donc de l'action des projectiles entiers, c'est à dire des H_2^+ et des H_3^+ sur les profondeurs moyennes $\lambda_0(\text{H}_2^+)$ et $\lambda_0(\text{H}_3^+)$ à partir de l'entrée de la cible, et de l'action des protons et électrons séparés sur les profondeurs $\lambda_{se} - \lambda_0(\text{H}_2^+)$ et $\lambda_{se} - \lambda_0(\text{H}_3^+)$, où λ_{se} est la profondeur moyenne d'échappement des électrons. Sur la profondeur moyenne λ_0 , l'effet d'écrantage des protons par les électrons du projectile conduit à une réduction de l'émission électronique par rapport à celle de deux ou trois protons indépendants. On peut également considérer que les électrons liés ne contribuent pas à l'émission électronique car leurs interactions avec les

électrons du solide conduiraient à l'ionisation des ions moléculaires. Sur la profondeur moyenne ($\lambda_{se} - \lambda_0$), les constituants des ions moléculaires sont séparés, mais les protons sont toujours à de très faibles distances les uns des autres. On peut calculer en effet que sur une profondeur d'environ 100 Å, correspondant à λ_{se} , le temps de passage des projectiles varie entre 1.9 fs à 150 keV/u et 0.7 fs à 1 MeV/u. Pour des temps de passage si courts, les distances entre protons sont pratiquement inchangées, elles passent de 1.3 Å à environ 1.5 Å pour les protons de H_2^+ et de 1.2 Å à 1.5 Å pour les protons de H_3^+ (cf. **figure 1.3** p. 12) [7]. L'explosion coulombienne des ions moléculaires a donc un effet négligeable sur l'émission électronique arrière. Les interactions des protons sur la profondeur ($\lambda_{se} - \lambda_0$) doivent alors être considérées en tenant compte des interférences des sillages des protons très proches, car les distances entre protons sont inférieures à la distance d'écran dynamique $\lambda = v/\omega_p$. Cela signifie que les charges des protons incidents ne sont pratiquement pas écrantées par les électrons du solide et que la proximité et la simultanéité de leurs interactions avec les électrons des cibles conduisent à des effets collectifs. Les conséquences de ce phénomène sur l'émission électronique sont difficiles à modéliser. Mais il est raisonnable de penser qu'il peut intervenir dans l'étape de production des électrons secondaires et aussi dans l'étape de transport des électrons secondaires dans le solide jusqu'au franchissement de la surface.

Pour l'étape de production des électrons secondaires, ces effets collectifs concernent essentiellement les interactions à grand paramètre d'impact, car les protons incidents se comportent vis à vis de ces collisions distantes comme une charge unique égale à $\sum Z_i$. Le dépôt d'énergie associé aux collisions distantes variant en $(\sum Z_i)^2$, conduit donc à une augmentation du nombre d'électrons secondaires lents produits par ces collisions en comparaison à des protons indépendants $\sum Z_i^2$. La réduction du nombre d'électrons émis ne peut alors être due qu'à l'étape de transport des électrons secondaires dans le solide. Les électrons lents ($E \leq 25$ eV) sont les électrons les plus affectés par la dégradation de leur énergie dans le transport dans le solide et dans le franchissement de la barrière de potentiel de surface. Pour expliquer la modification du transport des électrons secondaires, on peut envisager un pur effet de charge comme déjà proposé pour interpréter la réduction des rendements électroniques à l'impact d'agrégats H_n^+ [4]. Si on considère la charge d'espace locale créée par les projectiles incidents, il est évident que les protons fragments d'un ion moléculaire exercent une force attractive plus grande sur les électrons de basse énergie environnants que dans le cas d'un proton seul. Cet effet de charge conduit à une réduction de l'émission électronique, réduction d'autant plus grande que le nombre de protons est grand.

Finalement la réduction de l'émission électronique secondaire à l'impact des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ en comparaison à l'émission induite par leurs constituants indépendants provient en premier lieu de la contribution limitée des ions moléculaires avant dissociation à cause de l'écrantage des charges incidentes. Un deuxième argument en faveur de cette émission électronique réduite est lié à un effet de charge des protons fragments qui limite le transport des électrons de basse énergie dans le solide.

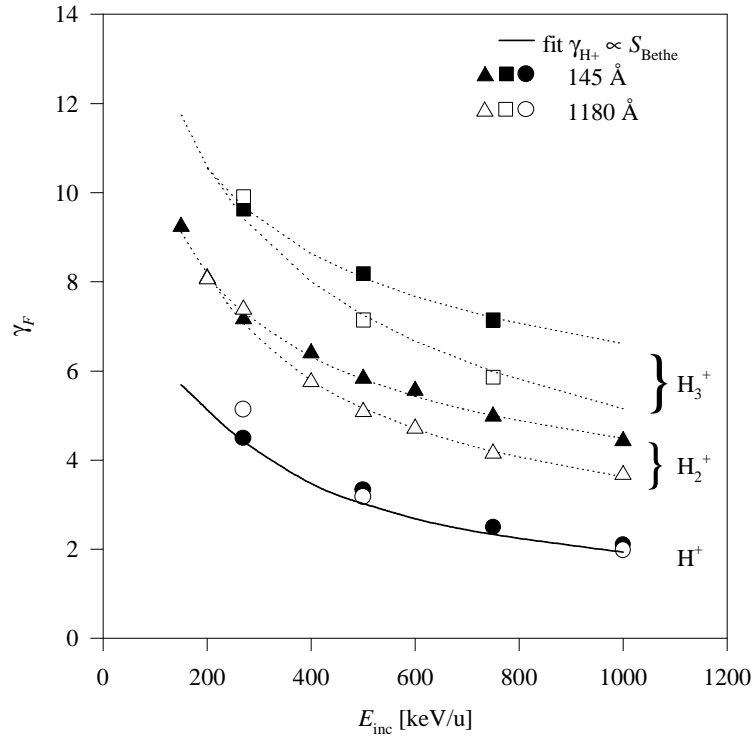


Figure 4.5 : Rendements de l'émission électronique secondaire avant des cibles de carbone induite par des protons et les fragments des ions H^+ , H_2^+ et H_3^+ transmis à travers la cible, en fonction de l'énergie incidente par proton.

4.2 Emission électronique secondaire avant

La **figure 4.5** montre les rendements de l'émission électronique secondaire avant de la cible mince et de la cible épaisse de carbone (épaisseurs de 145 Å et 1180 Å inclinées de 45°) à l'impact de H_2^+ et H_3^+ d'énergies comprises entre 150 keV et 1 MeV par proton. Les rendements électroniques dûs à des protons incidents et leur ajustement par la courbe du pouvoir d'arrêt du carbone sont également montrés sur cette figure. On observe que les rendements d'émission électronique secondaire mesurés à l'avant des cibles minces sont supérieurs à ceux des cibles épaisses pour une énergie incidente supérieure à 200 keV/u, cette différence augmentant avec l'énergie incidente.

Compte tenu des faibles valeurs des libres parcours moyens des ions moléculaires, la dissociation de ces ions se produit près de la surface d'entrée des cibles et dans ce domaine d'énergie les électrons perdus par les projectiles ont des parcours dans le carbone plus faibles que l'épaisseur de la cible mince. Nous avons vu avec les atomes H^0 , dont le libre parcours moyen est comparable à celui des ions moléculaires, que la probabilité de transmission des électrons des projectiles incidents n'est observée que pour les énergies incidentes supérieures à 1 MeV/u. Les électrons incidents ne sont donc pas responsables de l'augmentation du rendement de la cible mince. On peut donc supposer que la cause de cette différence réside dans les différences de configurations de sortie (distances entre protons) des protons du projectile entre les cibles mince et épaisse. Ces différences de configuration peuvent notamment influencer les étapes de production, transport et passage de la barrière de surface des électrons secondaires.

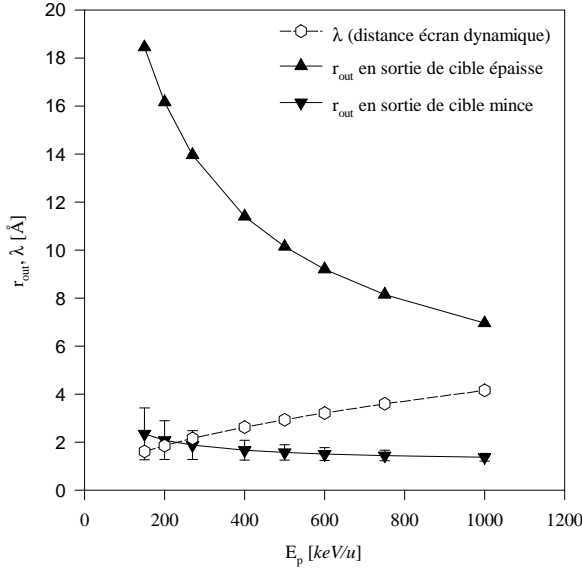


Figure 4.6 : Distances des constituants d'un H^+ en sortie de cibles de carbone épaisse (≈ 1600 Å) et mince (≈ 200 Å), et distances d'écran dynamique en fonction de l'énergie incidente. Les points représentent les distances après explosion coulombienne écrantée, et les barres d'erreur la largeur du cône de sortie des protons dû à la diffusion multiple.

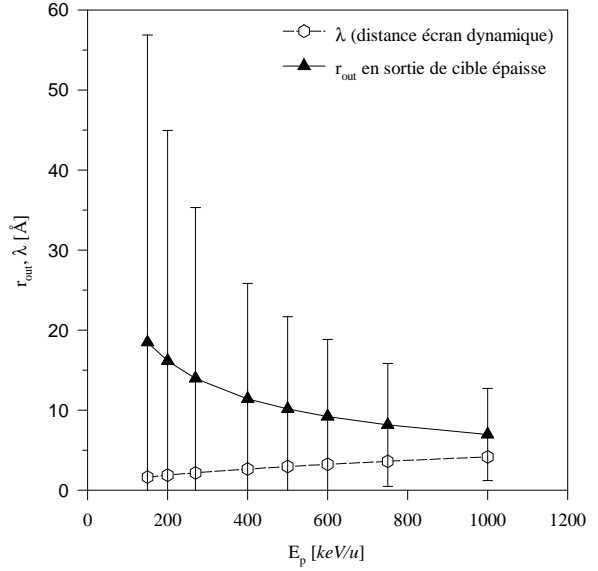


Figure 4.7 : Distances des constituants d'un H^+ en sortie de cibles de carbone épaisse (≈ 1600 Å) dues à l'explosion coulombienne écrantée et à la diffusion multiple, et distances d'écran dynamique en fonction de l'énergie incidente. Les points représentent les distances dues à l'explosion coulombienne écrantée, et les barres d'erreur l'incertitude sur r due à la diffusion multiple.

4.2.1 Explosion coulombienne et diffusion multiple

Nous avons présenté dans le **chapitre 1 p. 5** les processus d'interaction des ions polyatomiques avec l'exemple de la séparation des protons d'un ion diatomique sous l'effet de l'explosion coulombienne et de la diffusion multiple. Nous avons calculé dans le cas d'une explosion coulombienne écrantée la distance r entre deux protons fragments d'un ion H_2^+ , à la sortie de cibles minces de carbone d'épaisseur $d = 1600$ Å et $d = 200$ Å correspondant aux cibles que nous avons utilisées dans nos expériences. Les valeurs r obtenues sont montrées sur les **figures 4.6 et 4.7** en fonction de l'énergie incidente par proton. On peut noter l'augmentation de la distance r entre les protons avec le temps de passage dans le solide qui correspond pour une épaisseur de cible donnée à une diminution de l'énergie incidente et pour une énergie donnée à une augmentation de l'épaisseur de la cible. Il faut noter que dans ces calculs la perte d'énergie des protons est négligée. De plus la distance r entre deux protons représente la distance maximale entre les points d'émergence de la cible, elle correspond aux ions moléculaires orientés perpendiculairement à la direction d'incidence.

En faisant l'hypothèse simplificatrice que la diffusion multiple agit sur chaque proton indépendamment de la répulsion coulombienne, on peut exprimer l'incertitude sur la distance r entre deux protons de la façon suivante :

$$\Delta r = \sqrt{(d\alpha_{1/2})^2 + (d\alpha_{1/2})^2} \quad (4.8)$$

Les incertitudes sur les valeurs de r ainsi calculées sont représentées par les barres d'erreur des **figures 4.6** et **4.7**. On peut remarquer que dans le cas d'une cible épaisse la diffusion multiple qui est le processus dominant pour la séparation des protons, conduit à une très grande incertitude sur la détermination de la distance entre protons en sortie de cible. Sur ces figures est également montrée la variation de la distance d'écran dynamique λ avec l'énergie incidente. Dans le domaine d'énergie de nos expériences avec les ions H_2^+ , entre 0.25 et 1.0 MeV/u, en sortie de la cible de 200 Å la distance entre deux protons est toujours inférieure à la distance d'écran dynamique. On peut donc s'attendre à ce que les effets de proximité des deux protons interviennent dans tout le domaine d'énergie. Avec la cible de 1600 Å la distance moyenne r supérieure à la distance d'écran dynamique laisse supposer que les interactions des protons avec les électrons du solide devraient être indépendantes.

L'évolution des distances interatomiques des constituants des H_2^+ et H_3^+ étant comparable durant les premières femtosecondes de l'explosion coulombienne simple [7], il en est de même pour la diffusion multiple, ces résultats sur les cibles minces et épaisse peuvent être étendus au cas des H_3^+ .

4.2.2 Résultats et discussion des rendements électroniques d'émission avant

Pour discuter l'émission électronique avant, il est intéressant de comparer les rendements mesurés à la somme en unités de rendement électroniques avant induits par des protons indépendants de même vitesse. Les électrons incidents ne traversent pas la cible et n'ont donc pas d'influence sur l'émission électronique de la face avant.

Si $\gamma_F(H^+)$ est le rendement obtenu avec des protons de même vitesse incidente que l'ion moléculaire, nous pouvons définir l'“*effet moléculaire avant*” par les quantités :

$$R_F(H_2^+) = \frac{\gamma_F(H_2^+)}{2\gamma_F(H^+)} \quad (4.9)$$

$$R_F(H_3^+) = \frac{\gamma_F(H_3^+)}{3\gamma_F(H^+)} \quad (4.10)$$

Les valeurs de $R_F(H_2^+)$ et $R_F(H_3^+)$ sont montrées sur la **figure 4.8**. On observe que les effets moléculaires avant, comme les effets moléculaires arrière, sont négatifs, qu'ils diminuent avec l'énergie incidente et sont plus grands pour les ions H_3^+ que pour les ions H_2^+ . L'observation d'un effet moléculaire est assez surprenant dans le cas d'une cible épaisse car on aurait pu s'attendre à ce que la distance entre les protons en sortie de cibles soit suffisamment grande pour que les protons interagissent avec les électrons du solide indépendamment les uns des autres. Un effet moléculaire négatif a déjà été rapporté par ROTHARD *et al.* [12] qui soupçonnaient alors qu'il pouvait s'agir d'une erreur systématique dans les mesures de courant utilisées pour déterminer les rendements électroniques. Nos résultats obtenus avec une technique expérimentale différente confirment bien leurs valeurs expérimentales. Nous allons examiner plus précisément ces résultats en distinguant le cas de la cible mince de celui de la cible épaisse.

En sortie de la cible mince, les distances r_{ij} entre protons sont peu différentes des distances initiales r_0 des ions moléculaires. Avec l'exemple de l'ion H_2^+ montré sur la **figure 4.6**, on constate

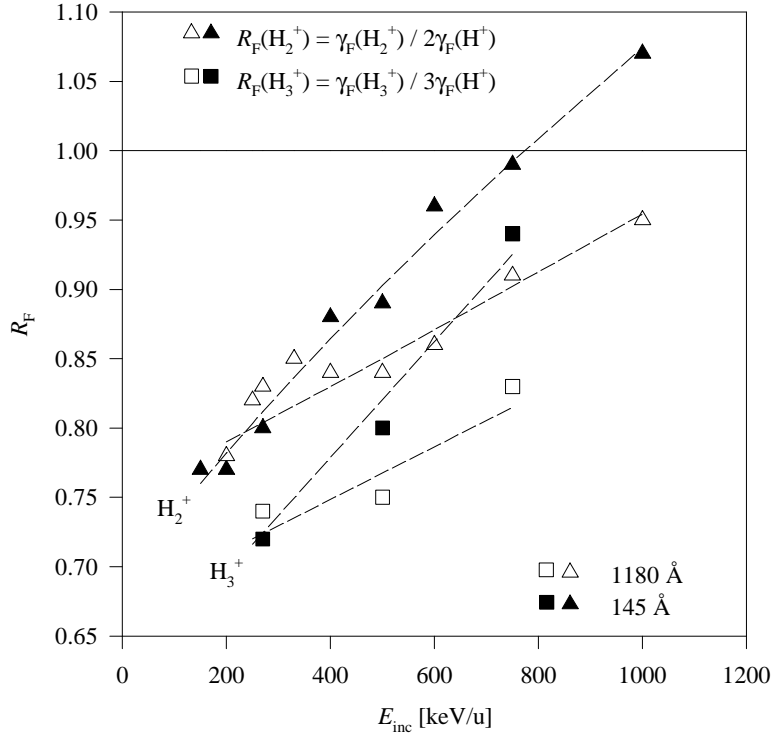


Figure 4.8 : Effets moléculaires $R_F(H_2^+)$ et $R_F(H_3^+)$ calculés à partir de l'émission électronique avant des cibles de carbone.

que sur la plus grande part du domaine d'énergie de notre étude, elles sont également inférieures à la distance d'écran dynamique λ . Avec une cible aussi mince on se retrouve donc pour l'émission avant dans une situation comparable à celle de l'émission arrière induite par les fragments des ions moléculaires après dissociation, avec l'électron en moins. La production des électrons se caractérise par une part accrue des électrons secondaires lents résultant des effets collectifs dans les collisions distantes projectile-électron cible, mais l'éjection du solide de ces électrons lents est inhibée par les effets de charge induits par les protons. En plus d'une modification du transport des électrons dans le solide, il n'est pas impossible que la présence des protons en sortie de cible induise une augmentation du potentiel local de la barrière de surface.

Les distances entre protons en sortie de la cible épaisse, dues à la répulsion coulombienne écrantée, sont supérieures à la distance d'écran dynamique $\lambda = v/\omega_p$. Mais ces estimations sont entachées d'une grande imprécision à cause des effets des diffusions multiples sur les atomes cibles comme montré sur la **figure 4.7** avec l'exemple des protons d'un ion H_2^+ . De plus il ne faut pas négliger le fait que, dans le faisceau d'ions moléculaires incidents, toutes les orientations des molécules par rapport à la direction d'incidence sont équiprobables. Les distances r_{ij} sont calculées sur l'axe défini par deux protons et supposent que la direction de cet axe est inchangée pendant toute la traversée des cibles. Il n'est pas impossible que la distance qui intervient dans l'émission électronique soit la distance entre les points d'émergence des protons sur la face de sortie des cibles. Toutes ces considérations font que certains impacts d'ions moléculaires peuvent très probablement correspondre à des distances de sortie des protons sur la surface assez petites et par conséquent induire une émission électronique réduite par rapport à celle de protons dispersés. Leur contribution

peut expliquer l'effet moléculaire observé en sortie de la cible épaisse car le rendement électronique résulte de la superposition de toutes les configurations de sortie des protons.

Si l'augmentation des effets collectifs dans les rendements électroniques avant avec le nombre de constituants des ions moléculaires peut s'expliquer par l'augmentation de l'effet de charge induit par les protons proches, leur diminution observée pour des énergies incidentes croissantes relève d'une autre explication. En fait pour l'émission avant, l'absence d'effet collectif qui se traduirait par le rapport $R_F = 1$ ne peut être obtenu que pour des cibles beaucoup plus épaisses que celles que nous avons utilisées dans nos expériences. Avec les agrégats H_n^+ de basse énergie, l'effet agrégat disparaît pour des épaisseurs de cibles de 3000 Å [4]. Tant que les cibles sont suffisamment minces pour que l'émergence de deux protons à faible distance soit un événement probable, le rapport $R_F = 1$ ne constitue pas une valeur limite des effets collectifs observés à l'avant des cibles. Il n'est pas impossible qu'un rapport $R_F > 1$ puisse être observé dans certaines conditions expérimentales. En particulier, pour un ion moléculaire ou un agrégat de taille donnée, une augmentation avec la vitesse incidente des effets collectifs dans les collisions distantes se traduira par une augmentation du nombre d'électrons lents produits alors que l'effet d'inhibition dû aux charges positives des ions devrait plus ou moins rester inchangé. De tels effets de la vitesse sur les interactions collectives des agrégats ont été prédits par des études théoriques pour des agrégats de plusieurs MeV/u [15]. A ces énergies incidentes élevées, il faut de plus tenir compte de la contribution à l'émission électronique avant des électrons des projectiles transmis à travers les cibles.

Nous voyons sur la **figure 4.8** que les effets moléculaires observés sont négatifs (sauf pour les H_2^+ d'énergie incidente de 800 keV/uma sur la cible mince). Dans tous les cas où $R_F < 1$, cela peut être dû à une modification du transport des électrons secondaires vers la surface, causée par des perturbations entre les volumes de cascades associés aux protons émergents.

La supériorité des valeurs de R observées sur les cibles minces par rapport aux cibles épaisses peut provenir de l'augmentation de la production des électrons secondaires. En effet, la distance des protons en sortie de cible mince r_{ij} est de l'ordre de la distance initiale r_0 : $r_{ij} \approx r_0$, et inférieure à la distance d'écran dynamique : $r_{ij} < \lambda_p = v/\omega_p$ (ω_p est la fréquence de plasma de la cible) ce qui implique une augmentation de la production des électrons lents par collisions distantes, qui est proportionnelle à $(\sum Z)^2$, les protons se comportant comme une charge unique vis-à-vis des collisions distantes.

4.2.3 Distributions statistiques des électrons émis à l'avant des cibles

Les distributions d'électrons secondaires que nous avons mesurées expérimentalement ont toutes été ajustées à l'aide de distributions de PÓLYA. Nous avons reporté sur les **figures 4.9** et **4.10** les variations en fonction de l'énergie des paramètres b de PÓLYA des distributions expérimentales des électrons émis à l'avant. L'augmentation du paramètre b des distributions de PÓLYA avec l'énergie incidente, déjà discutée dans le **chapitre 3** dans le cas des protons incidents, est également observée pour les électrons émis par les protons fragments des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ en sortie de la cible épaisse, on remarque cependant que les valeurs de b sont plus petites. En sortie de la cible mince, les valeurs de b proches de zéro pour les fragments des ions H_2^+ indiquent que les distributions

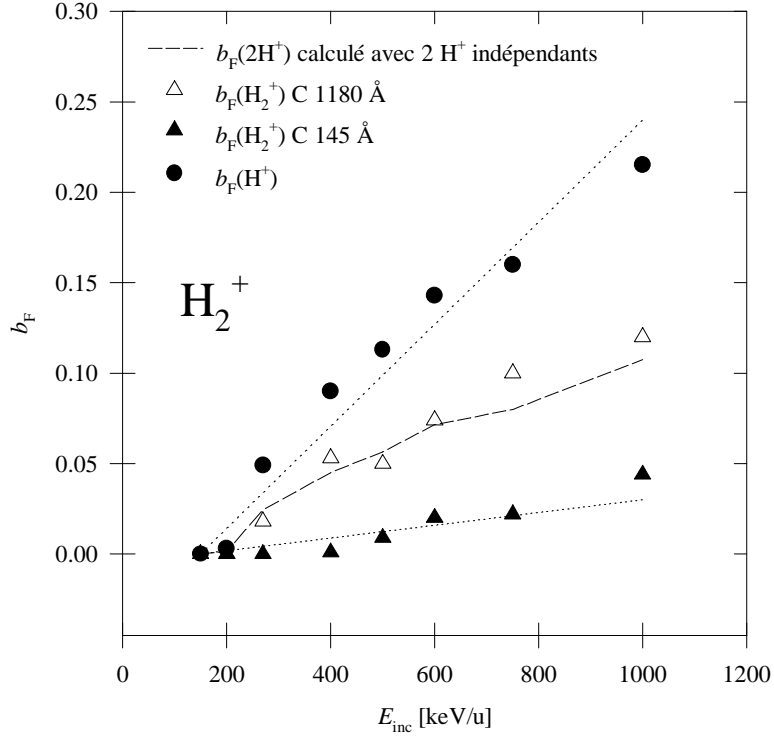


Figure 4.9 : Evolution des paramètres b de PÓLYA des distributions de l'émission électronique secondaire avant de cibles de carbone en fonction de l'énergie pour des H^+ et H_2^+ incidents.

expérimentales se rapprochent de distributions de POISSON. Pour les fragments des ions H_3^+ en sortie de cette même cible mince, le paramètre b des distributions expérimentales égal à zéro, est caractéristique de distributions de POISSON.

A partir des distributions des électrons émis pour des protons incidents, nous pouvons calculer quelles seraient les distributions des électrons émis par deux ou trois protons indépendants sortant simultanément d'une cible. Ces distributions sont obtenues par convolution de deux ou trois distributions élémentaires identiques à celle du proton seul. Une présentation détaillée des propriétés de la loi de PÓLYA et notamment des conditions de convolution de plusieurs distributions sont données dans l'**Annexe p. 119**. Nous ne présenterons ici que les relations utiles pour la convolution des deux distributions de PÓLYA, le calcul pour trois distributions étant similaires.

La convolution de deux distributions obéissant à la loi de PÓLYA $f_n(\mu_1, b_1)$ et $g_n(\mu_2, b_2)$ a pour résultat une distribution obéissant à la loi de PÓLYA $P_n(\mu, b) = f_n(\mu_1, b_1) * g_n(\mu_2, b_2)$ si, et seulement si :

$$\mu_1 b_1 = \mu_2 b_2 \quad (4.11)$$

les paramètres de la distribution résultante sont alors :

$$b = \frac{1}{1/b_1 + 1/b_2} \quad (4.12)$$

$$\mu = \frac{\mu_1 b_1}{b} = \frac{\mu_2 b_2}{b} \quad (4.13)$$

et l'on vérifie la propriété :

$$\mu b = \mu_1 b_1 = \mu_2 b_2 \quad (4.14)$$

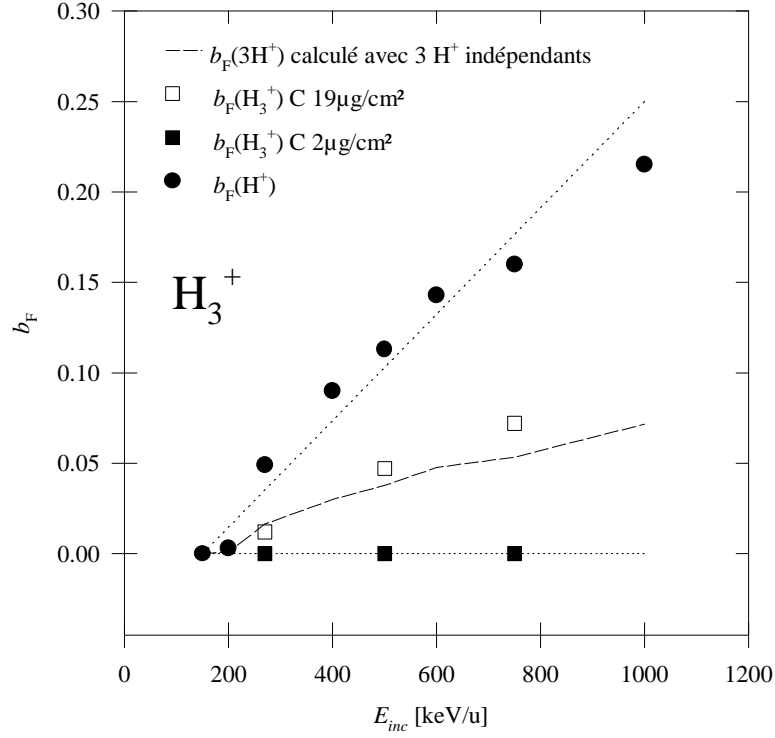


Figure 4.10 : Evolution des paramètres b de PÓLYA des distributions de l'émission électronique secondaire avant de cibles de carbone en fonction de l'énergie pour des H^+ et H_3^+ incidents.

Inversement, toute distribution de PÓLYA $P_n(\mu, b)$ peut être considérée comme issue de la convolution de deux distributions de PÓLYA $f_n(\mu_1, b_1)$ et $g_n(\mu_2, b_2)$ si, et seulement si leurs paramètres μ_1 , μ_2 , μ , b_1 , b_2 , et b obéissent aux **relations** (4.12), (4.13) et (4.14).

La distribution résultant de la convolution des deux distributions égale à la distribution expérimentale des électrons émis pour des protons incidents est caractérisée par sa valeur moyenne $\mu(2H^+)$ et le paramètre $b(2H^+)$ qui sont donnés par les relations suivantes :

$$\mu(2H^+) = 2\mu(H^+) \quad (4.15)$$

$$b(2H^+) = \frac{b(H^+)}{2} \quad (4.16)$$

On obtient de la même manière pour la convolution de trois distributions :

$$\mu(3H^+) = 3\mu(H^+) \quad (4.17)$$

$$b(3H^+) = \frac{b(H^+)}{3} \quad (4.18)$$

Les résultats de ces calculs sont montrés par les courbes (en tirets) de les **figures 4.9 et 4.10**. Il est clair que l'allure de ces courbes suit assez bien l'évolution en fonction de l'énergie du paramètre b des distributions mesurées en sortie de la cible épaisse et diffère donc totalement des résultats obtenus en sortie de la cible mince.

L'analyse des distributions statistiques met donc en évidence que les protons en sortie de cible épaisse interagissent avec les électrons du solide comme des protons indépendants. Nous devons cependant noter que l'égalité sur les valeurs moyennes des distributions n'est pas tout à fait vérifiée

puisque les rendements avant mesurés sont plus faibles (de 5 à 25 % dans tout le domaine d'énergie) que la somme des rendements des protons. Ce résultat est en faveur de notre interprétation à partir d'une modification du transport des électrons dans le solide jusqu'à la surface, car ces processus affectent plus le nombre moyen d'électrons émis que la forme de leur distribution statistique.

Les très faibles valeurs du paramètre b des distributions en sortie de cible mince sont caractéristiques de collisions individuelles projectile-électron à petits transferts d'énergie δE , conduisant à la production d'un petit nombre d'électrons secondaires par collision, c'est à dire des collisions distantes. On obtient donc avec les distributions statistiques des électrons en sortie de cible mince, une mise en évidence expérimentale des effets collectifs dans les collisions distantes, dûs à la proximité des protons et qui produisent des électrons secondaires lents.

4.3 Conclusion

Nous avons comparé l'émission électronique induite par des ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ traversant des cibles minces de carbone de différentes épaisseurs (de 200 à 1600 Å) à l'émission induite par des protons de même vitesse.

Nous avons observé que l'émission vers l'arrière induite par des ions H_2^+ et H_3^+ est plus petite que la somme des émissions induites par des protons indépendants de même vitesse (2 protons ou 3 protons). Cet écart peut s'interpréter à partir des effets de la charge incidente du projectile : d'abord effet d'écrantage de la charge des protons dans l'agrégat *intact*, puis contribution de l'émission secondaire propre aux électrons et aux protons incidents après dissocation du projectile.

La réduction de l'émission électronique avant induite par les protons émergeant des cibles dépend de l'épaisseur des cibles, car elle est fonction de la distance entre protons en sortie de cible. Pour des protons très proches, ce qui est le cas de l'émission arrière et de l'émission arrière et de l'émission avant de cibles très minces, la réduction observée du rendement électronique est interprétée par une modification du transport des électrons lents produits par les effets collectifs dans les collisions distantes.

Nous avons pu définir un critère d'indépendance des protons constituants des ions H_2^+ et H_3^+ en sortie de cible uniquement basé sur l'analyse des distributions d'électrons secondaires. Sa validité a pu être testée à partir des mesures de l'émission vers l'avant de cibles de différentes épaisseurs. Ce résultat est généralisable au cas d'un agrégat de n atomes identiques.

Bibliographie

- [1] H.H. ANDERSEN, J.F. ZIEGLER,
“*The Stopping & Ranges of Ions in Matter*” —J.F. ZIEGLER Ed., Pergamon Press,
New-York, Vol. 3(1977).
- [2] K. BAUDIN, A. BRUNELLE, S. DELLA-NEGRA, J. DEPAUW, Y. LE BEYEC, E.S. PARILIS,
Nucl. Instr. Meth. B, **117**(1996)47.
- [3] A. BILLEBAUD,
thèse de doctorat, UNIVERSITÉ LYON I, (1995).
- [4] A. BILLEBAUD, D. DAUVERGNE, M. FALLAVIER, R. KIRSCH, J.-C. POIZAT, J. REMILLIEUX, H. ROTHARD, J.P. THOMAS,
Nucl. Instr. Meth. B, **112**(1996)79.
- [5] N. CUE, N.V. DE CASTRO-FARIA, M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, J. REMILLIEUX,
Phys. Lett. A, **72**(1979)104.
- [6] N. CUE, N.V. DE CASTRO-FARIA, M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, J. REMILLIEUX,
Phys. Rev. Lett., **45**(1980)613.
- [7] M.J. GAILLARD, J.C. POIZAT, A. RATKOWSKI, J. REMILLIEUX, M. AUZAS,
Phys. Rev. A, **16**(1977)2323.
- [8] D. HASSELKAMP, A. SCHARMANN,
Phys. Stat. Sol. (a), **79**(1983)K197.
- [9] J. HÖLZL, K. JACOBI,
Surf. Sci., **14**(1969)351.
- [10] G. LAKITS, F. AUMAYR, H. WINTER,
Europhys. Lett., **10**(1989)679.
- [11] L.N. LARGE, W.S. WHITLOCK,
Proc. Phys. Soc., **79**(1962)148.

- [12] H. ROTHARD, K. KRONEBERGER, E. VEJE, A. CLOUVAS, J. KEMMLER, P. KOSCHAR, N. KELLER, S. LENCINAS, P. LORENZEN, O. HEIL, D. HOFMANN, K.O. GROENEVELD, *Phys. Rev. B*, **41**(1990)3959.
- [13] H. ROTHARD, D. DAUVERGNE, M. FALLAVIER, K.O. GROENEVELD, R. KIRSCH, J.C. POIZAT, J. REMILLIEUX, J.P. THOMAS, *Rad. Eff. and Defects in Solids*, **126**(1993)373.
- [14] B. SVENSSON, G. HOLMEN, *Phys. Rev. B*, **25**(1982)3056.
- [15] M VICANEK, I. ABRIL, N.R. ARISTA, A. GRAS-MARTÍ, *Phys. Rev. A*, **46**(1992)5745.

DU COURS DE CE TRAVAIL, nous avons étudié l'émission électronique secondaire de cibles solides minces à l'impact de projectiles d'hydrogène monoatomiques, les protons et les atomes H^0 , et polyatomiques, les ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ , en liaison avec les processus d'interaction dans les solides de ces projectiles. La simplicité de ces projectiles à petit nombre de constituants, protons et électrons, en fait des candidats privilégiés pour des études précises de l'émission électronique secondaire qu'ils induisent en surface des solides et donc des processus fondamentaux de leurs interactions dans les solides.

Dans ce manuscrit nous avons tout d'abord rappelé les notions fondamentales régissant la perte d'énergie électronique des particules chargées rapides dans les solides ainsi que les étapes successives (production, transport et éjection) qui décrivent le phénomène d'émission des électrons secondaires résultant du dépôt d'énergie par les projectiles incidents. L'aspect théorique du phénomène d'émission électronique est abordé avec une présentation de modèles semi-empiriques développés pour expliquer la variation du rendement électronique avec le dépôt d'énergie d'ions monoatomiques. Puis nous avons discuté l'aspect statistique de l'émission électronique en soulignant les informations sur les processus fondamentaux d'interaction que peuvent apporter les mesures des distributions statistiques des électrons émis.

Les expériences, réalisées avec les faisceaux délivrés par l'accélérateur VAN DE GRAAFF 2.5 MV de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, reposent sur la détection événement par événement des électrons émis par les deux faces de cibles minces de carbone lorsqu'elles sont traversées par des projectiles accélérés à des énergies variant entre 0.25 et 2.2 MeV. L'intérêt de cette configuration expérimentale est qu'elle permet de mesurer le nombre n d'électrons émis, y compris la valeur n égale à zéro, en coïncidence avec la détection des projectiles transmis que l'on peut sélectionner en fonction de leur état de charge à l'émergence des cibles. On est alors à même d'associer la multiplicité des électrons émis avec des processus particuliers d'interaction des projectiles avec les constituants du solide.

L'analyse des spectres d'électrons expérimentaux résultant de la détection des électrons émis par des détecteurs semi-conducteurs de silicium, se fait à partir d'un ajustement des pics correspondant à une multiplicité donnée, qui tient compte de la rétrodiffusion des électrons sur les atomes de silicium du détecteur. Le logiciel de dépouillement des spectres que nous avons développé, per-

met un traitement rapide et quasi automatique des données expérimentales brutes et donne une comparaison des distributions statistiques mesurées aux principales lois statistiques (loi binômiale, lois de POISSON, GAUSS ou PÓLYA). Ce logiciel est également adapté au dépouillement de spectres biparamétriques, qui permettent de déceler et d'étudier les éventuelles corrélations entre le nombre d'électrons émis à l'arrière des cibles à l'impact d'un projectile sur la surface et le nombre d'électrons émis à l'avant des cibles lors de l'émergence de ce projectile.

Les distributions statistiques des électrons émis que nous avons mesurées dans nos expériences sont des distributions de PÓLYA dont les largeurs dépendent de la séquence des transferts d'énergie dans les collisions successives projectile-électron. Cette caractéristique est particulièrement bien montrée par l'augmentation avec l'énergie incidente de la largeur de nos distributions électroniques expérimentales que nous avons comparées pour des protons incidents aux résultats des simulations Monte Carlo réalisées par A. DUBUS. La valeur moyenne des distributions qui correspond au rendement électronique dépend par contre du dépôt moyen d'énergie des projectiles sur la profondeur d'échappement des électrons et peut donc être reliée à leur perte d'énergie.

L'émission électronique secondaire consécutive aux interactions d'atomes d'hydrogène dans une feuille mince de carbone illustre les effets particuliers dûs à l'ionisation du projectile. En raison des faibles valeurs de leur libre parcours moyen dans le carbone ($10 \text{ \AA} \leq \lambda_0 \leq 35 \text{ \AA}$ pour $0.3 \text{ MeV} \leq E \leq 2.2 \text{ MeV}$), les atomes incidents sont rapidement ionisés lors de leur pénétration dans le solide. Le faisceau incident à l'intérieur des cibles est donc constitué de différentes entités, des atomes H^0 , des protons et des électrons, de même vitesse. A partir d'une comparaison des rendements électroniques arrière des cibles de carbone à l'impact d'atomes H^0 et de protons, qui tient compte de cette composition du faisceau, nous avons estimé que la profondeur moyenne d'échappement des électrons secondaires est d'environ 100 \AA . Les différences entre les rendements électroniques mesurés en coïncidence avec des protons ou des atomes émergents ont été interprétées à partir des fractions respectives de protons, d'atomes H^0 transmis à état de charge gelé et d'atomes H^0 reconstitués par capture électronique.

Pour des atomes transmis à état de charge gelé, les rendements électroniques sont plus petits que pour des protons de même vitesse. Cette réduction, qui est de près de 50 % pour l'émission arrière, est due à l'écrantage de la charge du proton par l'électron lié. Les différences observées entre rendements électroniques arrière et avant montrent quelles sont les interactions des projectiles qui sont affectées par l'effet d'écrantage : Les collisions distantes à grands paramètres d'impact sont supprimées, ce qui conduit à une augmentation de la part relative des collisions proches. Les électrons δ issus de ces collisions proches et qui sont préférentiellement produits vers l'avant ont une contribution relative à l'émission avant plus grande que dans le cas des protons incidents. Avec les atomes H^0 reconstitués, c'est à dire produits par capture d'un électron du solide par un proton près de la surface de sortie des cibles, nos résultats d'émission électronique avant montrent les effets des processus de capture des électrons de cœur des atomes de carbone. Les captures K , qui sont le processus de capture dominant pour des protons d'énergie supérieure à 500 keV, sont à l'origine d'une production supplémentaire d'électrons secondaires due à la décroissance par transition AUGER des lacunes K créées sur les atomes de carbone. Les rendements électroniques avant d'une cible très mince, d'environ 150 angströms, montrent que pour des énergies supérieures à 1 MeV, les électrons perdus par les atomes incidents contribuent eux aussi à la production d'électrons

secondaires. Les distributions statistiques des électrons émis nous ont permis de déterminer la probabilité de transmission des électrons de projectiles à travers la cible et le nombre moyen de leurs électrons de cascade qui sont émis.


Les rendements électroniques induits par les ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ , traduisent les effets collectifs dans les interactions de ces projectiles, ou de leurs constituants séparés après dissociation, avec les électrons du solide. Ces effets collectifs, fonction des distances entre les constituants des ions moléculaires, interviennent dans la production des électrons secondaires et aussi dans leur transport dans le solide jusqu'à la surface de sortie. Les effets moléculaires correspondent à des rendements électroniques plus faibles que la somme des rendements électroniques induits par les constituants indépendants. Pour l'émission arrière cette réduction de l'émission électronique est due à l'écrantage des charges des protons par les électrons liés avant dissociation des ions moléculaires et à l'inhibition du transport des électrons lents à cause de la charge d'espace locale créée par les protons très proches après dissociation.

La variation avec l'épaisseur des cibles des effets moléculaires dans l'émission électronique avant, qui est induite par les protons fragments de la dissociation des ions, met en évidence le rôle de la distance de séparation des protons à l'émergence des cibles. Pour une cible très mince, la réduction de l'émission électronique est interprétée comme une modification du transport des électrons lents analogue à celle proposée pour l'émission arrière car les distances entre protons dans ce domaine de vitesse sont peu différentes des distances initiales. Quand l'épaisseur de cible traversée est telle que les protons se sont dispersés dans le solide sous l'effet de la répulsion coulombienne et surtout des diffusions multiples sur les atomes cibles, la réduction du rendement électronique est plus surprenante car les distributions statistiques des électrons émis montrent que les électrons secondaires sont produits par des protons indépendants. La réduction du nombre moyen d'électrons éjectés des cibles ne peut provenir que des étapes ultérieures à la production, c'est à dire leur transport dans le solide et leur franchissement de la barrière de potentiel de la surface.

En conclusion à ces études expérimentales, nous pouvons dire que l'étude de la multiplicité des électrons émis par les surfaces des solides à l'impact d'atomes ou d'ions polyatomiques constitue une méthode expérimentale performante pour l'étude des processus de dépôt d'énergie résultant des interactions de ces projectiles avec les solides. Avec les atomes d'hydrogène et les ions moléculaires H_2^+ et H_3^+ , qui ont déjà fait l'objet de nombreuses études, les processus d'interaction dans les solides (durée de vie, explosion coulombienne, diffusion multiple...) assez facilement modélisables et donc relativement bien connus, nous ont permis de proposer des interprétations simples des effets observés. Il reste que des effets comparables peuvent être attendus pour des projectiles polyatomiques plus complexes, comme des agrégats à plus grand nombre d'atomes ou composés d'atomes plus lourds, et qu'alors la mesure des distributions statistiques des électrons émis devrait apporter des informations essentielles pour la compréhension de leurs mécanismes d'interaction dans les solides.

5. Conclusion

A.1 Introduction

 LA LOI DE PÓLYA est utilisée avec succès dans le cadre de l'Emission Electronique Secondaire pour ajuster les distributions expérimentales de probabilités $P(n) = W_n$ [5]. Cette loi est définie par deux paramètres, sa moyenne μ et un paramètre b qui traduit son élargissement par rapport à la loi de POISSON, qu'il s'agit de relier aux grandeurs physiques intervenant dans le phénomène d'émission électronique secondaire. Si la valeur moyenne de la distribution est facilement identifiable au rendement électronique, la signification du paramètre b est plus délicate et toujours sujet de débat [2] [1].

D'après KOROLIUK [4, p.105], la loi de PÓLYA sert à décrire les expériences de nature suivante :

“On dispose d’une urne contenant Np boules blanches et $N(1 - p)$ boules noires. On tire au hasard une boule puis on la replace dans l’urne avec s nouvelles boules de même couleur. La variable aléatoire ξ désigne le nombre de tirages d’une boule blanche dans une série de n tirages. Cette loi est largement utilisée pour la simulation des épidémies.”

Elle s'écrit :

$$P\{\xi = k\} = \frac{k!}{n!(n-k)!} \frac{b(b+s) \dots [b+(k-1)s]c(c+s) \dots [c+(n-k-1)s]}{N(N+s) \dots [N+(n-1)s]} \quad (\text{A.1})$$

avec $b = Np$ et $c = N(1 - p)$

Si, de plus, $n \ll N$, alors :

$$P\{\xi = k\} \approx \frac{k!}{n!(n-k)!} p^k (1-p)^{n-k} \quad (\text{A.2})$$

A.2 Obtention de la loi de Pólya

Dans le présent travail, nous utiliserons une autre forme de cette distribution, obtenue par composition d'une loi de POISSON avec une loi gamma [3, p.57].

La loi de POISSON s'écrit ($\mu > 0$) :

$$P_n(\mu) = e^{-\mu} \frac{\mu^n}{n!} \quad (\text{A.3})$$

et la loi gamma a pour expression ($\chi > 0, \alpha > 0, n > 0$) :

$$\gamma_\chi(\alpha, n) = \frac{1}{\Gamma(n)} \alpha^n \chi^{n-1} e^{-\alpha\chi} \quad (\text{A.4})$$

En composant ces deux lois, il vient :

$$P_p = \text{Poisson} \circ \gamma_p(\alpha, n) \quad (\text{A.5})$$

$$= \int_0^\infty e^{-x} \frac{x^p}{p!} \frac{1}{\Gamma(n)} \alpha^n x^{n-1} e^{-\alpha x} dx \quad (\text{A.6})$$

$$= \frac{\alpha^n}{\Gamma(n) p!} \int_0^\infty e^{-(\alpha+1)x} x^{p+n-1} dx \quad (\text{A.7})$$

or :

$$\int_0^\infty x^{n-1} e^{-\beta x} dx = \frac{\Gamma(n)}{\beta^n} \quad (\text{A.8})$$

donc :

$$(\text{A.7}) \Leftrightarrow \frac{\alpha^n \Gamma(p+n)}{\Gamma(n) p! (\alpha+1)^{p+n}} \quad (\text{A.9})$$

$$= \frac{\alpha^n}{p! (\alpha+1)^{p+n}} \times (p+n-1) \dots n \quad (\text{A.10})$$

$$= \frac{\alpha^n n^p}{p! (\alpha+1)^{p+n}} \prod_{k=0}^{p-1} \left(1 + k \frac{1}{n}\right) \quad (\text{A.11})$$

$$= \frac{(n\alpha)^p}{p!} \left(1 + \frac{1}{n} n\alpha\right)^{-(p+\frac{1}{1/n})} \prod_{i=1}^p \left(1 + (i-1) \frac{1}{n}\right) \quad (\text{A.12})$$

en posant $\mu = n\alpha$ et $b = 1/n$, on a $\mu \geq 0$ et $0 \leq b \leq 1$ et il vient :

$$\text{Pólya}_p(\mu, b) = \text{Poisson} \circ \gamma_p(b\mu, \frac{1}{b}) \quad (\text{A.13})$$

$$\text{Pólya}_p(\mu, b) = \frac{\mu^p}{p!} (1 + b\mu)^{-p-\frac{1}{b}} \prod_{i=1}^p (1 + (i-1)b)$$

(A.14)

A.3 Convolution de deux lois de Pólya

La somme de deux variables aléatoires obéissant à la loi de PÓLYA est intéressante à calculer, car elle est la signature de deux événements stochastiquement indépendants¹; par extension, il serait utile de généraliser ce résultat à n distributions.

¹Dans le contexte de notre étude, cela revient à chercher la distribution résultante de l'action de n projectiles n'interagissant pas mutuellement.

On calcule le résultat de la convolution de deux distributions *quelconques* de PÓLYA à l'aide du produit de leurs fonctions caractéristiques² [6] :

$$\text{on pose : } X = \text{Pólya}(\mu, b) \quad (\text{A.15})$$

$$E(s^X) = \sum_{p=0}^{\infty} s^p P(X = p) \quad (\text{A.16})$$

$$= \sum_{p \geq 0} s^p \int_0^{\infty} e^{-x} \frac{x^p}{p!} \frac{(b\mu)^{1/b}}{\Gamma(1/b)} x^{\frac{1}{b}-1} e^{-b\mu x} dx \quad (\text{A.17})$$

$$= \int_0^{\infty} e^{-x} e^{sx} x^{\frac{1}{b}-1} e^{-b\mu x} \frac{(b\mu)^{1/b}}{\Gamma(1/b)} dx \quad (\text{A.18})$$

$$= \frac{(b\mu)^{1/b}}{\Gamma(1/b)} \int_0^{\infty} e^{-(1+b\mu-s)x} x^{\frac{1}{b}-1} dx \quad (\text{A.19})$$

$$= \frac{(b\mu)^{1/b}}{\Gamma(1/b)} \frac{\Gamma(1/b)}{(1+b\mu-s)^{1/b}} \quad (\text{A.20})$$

$$\mathcal{F}_c(\text{Pólya}(\mu, b)) = \left(1 + \frac{1-s}{b\mu}\right)^{-1/b} \quad (\text{A.21})$$

Le produit des fonctions caractéristiques de deux variables aléatoires X et Y obéissant à la loi de PÓLYA ($X = \text{Pólya}(\mu, b)$ et $Y = \text{Pólya}(\mu', b')$) donne :

$$E(s^X) \times E(s^Y) = \left(1 + \frac{1-s}{b\mu}\right)^{-1/b} \times \left(1 + \frac{1-s}{b'\mu'}\right)^{-1/b'} \quad (\text{A.22})$$

qui est de la forme :

$$(1 + ct)^n \times (1 + c't')^{n'} \equiv (1 + c''t)^{n''} \quad (\text{A.23})$$

La fonction résultante est une fonction caractéristique de PÓLYA si, et seulement si : $c = c'$, ce qui implique : $\mu b = \mu' b'$. Les paramètres de la distribution résultante sont alors définis par :

$$\boxed{\mu'' = \frac{\mu b}{b''} = \frac{\mu' b'}{b''}} \quad (\text{A.24})$$

$$\boxed{b'' = \frac{1}{1/b + 1/b'}} \quad (\text{A.25})$$

Ce résultat est généralisable à j distributions de PÓLYA $f_{1n}(\mu_1, b_1), \dots, f_{1j}(\mu_j, b_j)$. Leur convolution donne une distribution de PÓLYA $P_n(\mu, b) = *_{i=1}^j f_{in}(\mu_i, b_i)$ si, et seulement si :

$$\mu_1 b_1 = \mu_2 b_2 = \dots = \mu_j b_j \quad (\text{A.26})$$

les paramètres de la distribution résultante étant donnés par :

$$b = \frac{1}{\sum_{i=1}^j 1/b_i} \quad (\text{A.27})$$

$$\mu = \frac{\mu_1 b_1}{b} = \dots = \frac{\mu_j b_j}{b} \quad (\text{A.28})$$

²Définie par : $\mathcal{F}_c(X) = E(s^X)$.

et l'on vérifie de nouveau la propriété :

$$\mu b = \mu_1 b_1 = \mu_2 b_2 = \dots = \mu_j b_j \quad (\text{A.29})$$

En particulier, l'autoconvolution d'une distribution de PÓLYA $f_n(\mu_1, b_1)$ au $(j-1)$ ème ordre résulte en une distribution de PÓLYA, $P_n(\mu, b) = \ast_{i=1}^j f_n(\mu_1, b_1)$, et il vient :

$$b = \frac{b_1}{j} \quad (\text{A.30})$$

$$n = j\mu_1 \quad (\text{A.31})$$

cela vérifie encore la propriété :

$$\mu b = \mu_1 b_1 \quad (\text{A.32})$$

Bibliographie

- [1] O. BENKA, A. SCHINNER, T. FINK,
Phys. Rev., A **51**(1995)2281.
- [2] A. DUBUS, J. DEVOOGHT, A. BILLEBAUD, R. KIRSCH, M. FALLAVIER, J.-C. POIZAT,
J. REMILLIEUX, Z. VIDOVIĆ,
Nucl. Instr. Meth. B, **125**(1997)45.
- [3] W. FELLER,
“*An introduction to probability theory and its application*” —Ed. Wiley, NYC, Vol II
(1957).
- [4] V. KOROLIOUK,
“*Aide-mémoire de théorie des probabilités et de statistique mathématique*” —Editions de
Moscou.
- [5] G. LAKITS, F. AUMAYR, H. WINTER,
Rev. Sci. Instrum., **60**(1989)3151.
- [6] D. PIAU,
Département de Probabilités de l'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD – LYON I, communica-
tion privée.